

# **Kohärente optische Prozesse und inkohärente Ladungsträgerdynamik in Germanium**

## **Dissertation**

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

dem Fachbereich Physik  
der Philipps-Universität Marburg

vorgelegt von

**Niko Köster**

aus Winterberg

Marburg/Lahn, 2012



Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg  
als Dissertation angenommen am: 01.08.2012

Erstgutachter: Priv. Doz. Sangam Chatterjee, Ph.D.

Zweitgutachter: Prof. Dr. Stephan W. Koch

Tag der mündlichen Prüfung: 06.08.2012





Für Tabea



# Inhaltsverzeichnis

<b>Table of Contents</b>	<b>i</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1 Licht-Materie Wechselwirkung . . . . .	3
2.1.1 Theoretische Betrachtung . . . . .	3
Optische Anregung . . . . .	4
THz Anregung . . . . .	6
2.1.2 Zeitskalen . . . . .	7
2.1.3 Bandentartungen und optische Auswahlregeln . . . . .	9
2.2 Eigenschaften von Germanium . . . . .	10
2.2.1 Bandstruktur von Ge, GaAs und Si . . . . .	11
2.2.2 Verspannte Schichten . . . . .	13
2.2.3 Germanium Quantenfilme . . . . .	15
2.3 Experimentelle Grundlagen . . . . .	17
2.3.1 Anrege-Abfrage Spektroskopie . . . . .	18
Erzeugung des Weißlichtsuperkontinuums . . . . .	21
Interpretation von differenziellen Absorptionssignalen . . . . .	22
2.3.2 Spektroskopie mit THz Pulsen . . . . .	23
THz-Erzeugung . . . . .	24
THz Detektion . . . . .	26
THZ Anrege-Abfrage Spektroskopie . . . . .	27
2.3.3 PL Kanten Emissions Spektroskopie . . . . .	27
2.4 Proben . . . . .	28
2.4.1 Ge-Quantenfilmprobe #8009 . . . . .	28
2.4.2 Ge Proben #56426, #56427, #56428, #56429 . . . . .	30
2.4.3 Ge Probe #56456 . . . . .	31
2.4.4 (GaIn)As-Quantenfilmprobe #DBR13 . . . . .	31

<b>3 Kohärente Dynamik</b>	<b>35</b>
3.1 Exzitonerischer Autler-Townes Effekt . . . . .	35
3.1.1 Spektroskopie an Exzitonen . . . . .	37
3.1.2 Autler-Townes Effekt in (GaIn)As . . . . .	38
3.1.3 Autler-Townes Effekt in Germanium . . . . .	44
3.2 Dynamischer Stark-Effekt . . . . .	48
3.2.1 Dynamischer Stark-Effekt in (GaIn)As . . . . .	50
3.2.2 Dynamischer Stark-Effekt in Germanium . . . . .	52
Polarisationsabhängigkeit . . . . .	53
Abhängigkeit von der Intensität der Anregung . . . . .	55
Abhängigkeit von der Verstimmung der Anregung . . . . .	58
Zeitliches Verhalten . . . . .	60
Nahresonante Anregung: Mollow-Triplet . . . . .	63
Hochenergetische Anregung . . . . .	67
<b>4 Ladungsträgerdynamik</b>	<b>69</b>
4.1 Spin-Dynamik und L Streuung . . . . .	69
4.2 Abkühlungsdynamik des Lochsystems . . . . .	77
4.2.1 Abkühlung heißer Ladungsträger . . . . .	78
4.2.2 Experimentelle Ergebnisse . . . . .	80
4.2.3 Vergleich mit der Theorie . . . . .	85
4.2.4 THz induzierte Aufheizung von Ladungsträgersystemen . . . . .	89
4.2.5 Zusammenfassung . . . . .	92
4.3 Optische Verstärkung in Germanium . . . . .	93
4.3.1 Zusammenfassung . . . . .	101
<b>5 Zusammenfassung</b>	<b>103</b>
<b>6 Summary</b>	<b>107</b>
<b>7 Literatur</b>	<b>109</b>
<b>8 Veröffentlichungen</b>	<b>121</b>
<b>9 Danksagung</b>	<b>125</b>

# 1 Einleitung

Die von der Halbleiterphysik in den vergangenen Jahrzehnten hervorgebrachten Errungenschaften sind heute aus unserem alltäglichen Leben nicht mehr wegzudenken. Grundsätzlich lassen sich die Einsatzgebiete von Halbleiterbauteilen in optische und elektrische Anwendungen unterteilen. Das Spektrum der elektrischen Bauteile reicht von einzelnen Transistoren bis hin zu hochkomplexen integrierten Schaltkreisen mit aktuell bis zu fast 7 Milliarden Transistoren. Silizium ist dabei das mit Abstand dominierende Materialsystem. Dies ist zum großen Teil auf seinen physikalischen Eigenschaften, sowie seines natürlichen Oxides und den technologisch sehr gut beherrschten Prozessen in der Verarbeitung dieses Materials begründet. Beispiele für optische Anwendungen sind Leuchtdioden aller Farben, Solarzellen und effiziente und leistungsfähige Laser für industrielle Prozesse oder gar medizinische Anwendungen. Dabei basiert der Großteil der optischen Bauteile auf III/V Halbleitermaterialien mit direkter Bandlücke. Die Schnittstelle zwischen diesen beiden Bereichen, also integrierte elektro-optische Bauteile, sind noch immer Gegenstand aktueller Forschung. Dies liegt daran, dass die Verwendung von III/V Halbleitern für solche Zwecke nicht kompatibel zu der heute bestehenden Siliziumtechnologie ist. Um an diese anknüpfen zu können, müssen optische Komponenten wie Lichtquellen, Detektoren und Modulatoren entwickelt werden, die sich in die etablierten Prozesse wie CMOS<sup>1</sup> integrieren lassen. Silizium selbst findet heute schon Anwendung bei beispielsweise Modulatoren, Photodetektoren oder Solarzellen. Für die Erzeugung von Licht ist Silizium allerdings weniger gut geeignet. So ist bis heute kein auf Siliziumtechnik basierender Laser erhältlich. Dieses ist aber die Kernkomponente für die Integration optischer Bauteile in elektrische Schaltkreise. Eine Vielzahl von Ansätzen wurden in der Vergangenheit bereits vorgeschlagen [1–7], doch sind diese meist nicht in die etablierten CMOS Prozesse integrierbar oder nur schwer zu miniaturisieren.

In den letzten Jahren hat sich Germanium, trotz seiner indirekten Bandstruktur, durch seine guten optischen Eigenschaften zu einem der Hoffnungsträger in diesem Be-

---

<sup>1</sup>engl.: Complementary metal-oxide-semiconductor

reich entwickelt. Viele Eigenschaften der klassischen direkten Halbleiter wie GaAs, konnten an Germanium nachgewiesen werden. Dazu zählt beispielsweise ein ausgeprägter quantum-confined Stark Effekt<sup>2</sup>, der genutzt werden kann um optische Modulatoren zu realisieren [8]. Auch erste Laseraktivität konnte an verspannten, dotierten Germaniumschichten nachgewiesen werden [9]. Rechnungen sagen sogar für hoch verspannte Germaniumschichten einen Übergang zu einer direkten Bandstruktur voraus [10]. Um das Potential von Germanium voll ausnutzen zu können, ist allerdings ein tiefes Verständnis der Ladungsträgerdynamik in dem Material unumgänglich. Durch die Verfeinerung der Wachstumsmethoden können Germaniumproben mit immer besserer Qualität hergestellt werden. Die Verfügbarkeit solcher Proben ist auch von hohem Interesse für die Grundlagenforschung. So zeigt Germanium bei einigen lange bekannte Effekte, wie den dynamischen Stark Effekt durch seine besonderen Eigenschaften ein von den direkten Halbleitern unterschiedliches Verhalten, was zu einem tieferen und vollständigeren Verständnis der ablaufenden Prozesse führt. Damit bietet es die Möglichkeit, altbekanntes aus einem anderen Blickwinkel neu zu entdecken, um dabei durch das Verständnis der Gemeinsamkeiten und Unterschiede das bisherige Bild zu erweitern.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden spektroskopische Experimente an verschiedenen Germanium und (GaIn)As basierten Proben durchgeführt. Ein Schwerpunkt ist dabei die Untersuchung der Ladungsträgerdynamik von optisch angeregten Germaniumschichten in Hinblick auf die optische Verstärkung und das Abkühlverhalten heißer Lochverteilungen. Im Weiteren wird die Lebenszeit spinpolarisierter Lochverteilungen von verspannten Germaniumquantenfilmen vermessen.

Ein weiterer Fokus dieser Arbeit liegt auf der Analyse kohärenter Prozesse in Germanium Quantenfilmen und der Vergleich mit dem in der Literatur bereits ausgiebig untersuchten Materialsystem (GaIn)As. Dabei werden der dynamischen Stark Effekt, sowie der intraexzitonische Autler-Townes Effekt genauer betrachtet werden.

---

<sup>2</sup>engl.; etwa Stark Effekt in räumlich eingeschränkten quantenmechanischen Systemen

## 2 Grundlagen

### 2.1 Licht-Materie Wechselwirkung

Zur Beschreibung und Erklärung der in dieser Arbeit betrachteten Phänomene ist ein grundlegendes Verständnis der Licht-Materie Wechselwirkung notwendig. In diesem Kapitel wird daher kurz auf die auf die in Halbleitern nach einer optischen Anregung ablaufenden Prozesse eingegangen. Außerdem werden die Grundlagen der später genutzten theoretischen Modelle dargestellt.

#### 2.1.1 Theoretische Betrachtung

Für ein tiefgreifendes Verständnis der Licht-Materie Wechselwirkung ist eine theoretische Analyse von großer Bedeutung. Um die zugrunde liegenden Mechanismen richtig zu erfassen, muss diese auf einer mikroskopischen Vielteilchentheorie basieren. Neben der Ankopplung der optischen Felder an die Probe ist es demnach auch wichtig, den Einfluss der Quasiteilchenwechselwirkungen auf die Dynamik des Systems richtig zu berücksichtigen. Die theoretische Beschreibung startet also von dem allgemeinen Hamiltonoperator  $H_{sys}$  des Systems der Form [11]

$$H_{sys} = H_0 + H_C + H_D + H_P. \quad (2.1)$$

Dabei enthält  $H_0$  alle nicht wechselwirkenden Anteile des Ladungsträger- Photon-Phonon Systems,  $H_C$  die Coulombwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern,  $H_D$  die Licht-Materie Wechselwirkung und  $H_P$  die Ladungsträger-Phonon Wechselwirkungen. Mehrteilchenkorrelationen werden dabei durch verwenden der Cluster-Zerlegung [11] konsequent mit berücksichtigt. Diese zerlegt die bei der Lösung der Bewegungsgleichungen auftretende unendliche Hierarchie gekoppelter Vielteilchengrößen in eine Reihe. Damit ergibt sich die Möglichkeit, diese systematisch in Hinsicht

auf die Zahl der korrelierten Teilchen abzubrechen. Die erste Ordnung dieser Entwicklung enthält dann die so genannten Singlet-Terme, welche die Wechselwirkung einzelner Teilchen in einer Molekularfeldnäherung beschreibt. Bricht man die Hierarchie nach diesen Termen ab, ist das Ergebnis identisch mit der Hartree-Fock Näherung [11]. In einem System von Coulomb wechselwirkenden Ladungsträgern reicht diese Näherung jedoch häufig nicht aus, um die Probeneigenschaften zu verstehen. Daher sollte die Theorie mindestens die zweite Ordnung der Cluster-Entwicklung, welche die Zweiteilchenkorrelationen (Doublet Terme) beschreibt, mit berücksichtigen. Diese beschreiben die Wechselwirkung korrelierter Zweiteilchengrößen. Damit ist die Theorie in der Lage auch exzitonische Effekte in der Probe beschreiben zu können. Dieser Ansatz hat in der Vergangenheit bereits gute Übereinstimmungen zwischen theoretischen Berechnungen und Experimenten geliefert [12–15].

### Optische Anregung

Zu der Bestimmung der Heisenberg'schen Bewegungsgleichungen nutzt man die Besetzungszahldarstellung der zu bestimmenden Größen. Dabei ist  $a_{\lambda,\mathbf{k}}^\dagger$  der Erzeugungsoperator eines Teilchens im Band  $\lambda$  mit dem Impuls  $\mathbf{k}$  und  $a_{\lambda,\mathbf{k}}$  der dazugehörige Vernichtungsoperator. Damit ergeben sich die Größen Polarisierung  $P_{\mathbf{k}} \equiv \langle a_{v,\mathbf{k}}^\dagger a_{c,\mathbf{k}} \rangle$ , Elektronenbesetzung  $f_{\mathbf{k}}^e \equiv \langle a_{c,\mathbf{k}}^\dagger a_{c,\mathbf{k}} \rangle$  und Lochbesetzung  $f_{\mathbf{k}}^h \equiv \langle a_{v,\mathbf{k}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}} \rangle$ .

Wertet man diese Größen mit der Heisenberg'schen Bewegungsgleichung aus, kommt man zu den so genannten Halbleiter-Bloch-Gleichungen. Bei Nutzung der Cluster-Entwicklung in Doublet-Näherung haben diese die Form

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} P_{\mathbf{k}} &= \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}} P_{\mathbf{k}} - (1 - f_{\mathbf{k}}^e - f_{\mathbf{k}}^h) \Omega_{\mathbf{k}} + \Gamma_{\mathbf{k}}^{v,c} + \Gamma_{v,c;\mathbf{k}}^{QED}, \\ \hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^e &= 2\text{Im} \left( P_{\mathbf{k}} \Omega_{\mathbf{k}}^* - \Gamma_{\mathbf{k}}^{c,c} - \Gamma_{c,c;\mathbf{k}}^{QED} \right), \\ \hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^h &= 2\text{Im} \left( P_{\mathbf{k}} \Omega_{\mathbf{k}}^* - \Gamma_{\mathbf{k}}^{v,v} - \Gamma_{v,v;\mathbf{k}}^{QED} \right). \end{aligned} \tag{2.2}$$

Die Ankopplung der Gleichungen an die Polarisierung und das elektrische Feld des optischen Impulses  $\mathcal{E}_{opt}$  ist in der verallgemeinerten Rabi-Frequenz  $\Omega_{\mathbf{k}}$  zusammengefasst:



$$\Omega_{\mathbf{k}} = d_{cv}\mathcal{E}_{opt} + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} P_{\mathbf{k}'} \quad (2.3)$$

Diese enthält das Dipolmatrixelement  $d_{cv}$  zwischen Valenz- und Leitungsband und den Renormalisierungsterm  $\sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} P_{\mathbf{k}'}$ .

In Gleichung 2.2 treten außerdem noch die renormalisierten Übergangsenergien  $\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}}$  auf:

$$\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}} \equiv \epsilon_{\mathbf{k}}^c - \epsilon_{\mathbf{k}}^v - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} (f_{\mathbf{k}'}^e + f_{\mathbf{k}'}^h). \quad (2.4)$$

Dabei handelt es sich um den energetischen Bandabstand zwischen Valenz- und Leitungsband unter Berücksichtigung der Coulombwechselwirkung zwischen den angeregten Ladungsträgern. Als Doubletbeiträge enthalten die Halbleiter-Bloch-Gleichungen außerdem noch den quantenoptischen Korrelationsterm  $\Gamma_{\lambda,\lambda';\mathbf{k}}^{QED}$ , sowie mikroskopischen Streuterme, welche in  $\Gamma_{\mathbf{k}}^{\lambda,\lambda'}$  zusammen gefasst sind. Im Allgemeinen beschreiben die mikroskopischen Doubletbeiträge Zweiteilchen Coulomb- und Phononwechselwirkungen. Diese sind wichtig zur korrekten Beschreibung der Dephasierung, der Energierenormalisierung, von Abschirmungseffekten, Ladungsträgerrelaxationen, sowie den exzitonischen Effekten. Die genaue Form dieser Terme ist ausführlich in Ref. [11] diskutiert.

Um aus den bestimmten Größen die im Experiment gemessene Transmission durch die Probe zu erhalten, ist es häufig ausreichend die selbstkonsistente Kopplung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen an die Maxwell'schen Wellengleichungen zu betrachten. Dabei sei die Ausbreitungsrichtung des Lichtes  $\mathbf{r} \perp \mathbf{k}$ , also orthogonal auf der Oberfläche der Probe.

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathcal{E}_{opt}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 |\xi(\mathbf{r})|^2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} \quad (2.5)$$

Die sich ergebende Gleichung enthält den Brechungsindex  $n$  des Materials, das klassische elektrische Feld  $\mathcal{E}_{opt}(\mathbf{r}, t)$ , das Betragsquadrat der Einhüllenden der Wellenfunktion  $|\xi(\mathbf{r})|^2$  in Richtung von  $\mathbf{r}$  und wird direkt von der makroskopischen optischen Polarisation beeinflusst, die gegeben ist durch

$$\mathbf{P} = \frac{d_{cv}}{S} \sum_{\mathbf{k}} (P_{\mathbf{k}} + c.c.). \quad (2.6)$$

Sie enthält die Quantisierungsfläche  $S$  und die Anteilen von  $P_{\mathbf{k}}$ , die normal auf der Ausbreitungsrichtung  $\mathbf{r}$  liegen, sowie dessen komplex konjugierten. Die numerische Auswertung dieser selbstkonsistenten Beziehung liefert die gewünschte Beschreibung des transmittierten elektrischen Feldes.

### THz Anregung

Diese Gleichungen beschreiben noch nicht die Wechselwirkung von optisch angeregten Halbleitern mit THz Feldern. Dazu wird dieser mittels minimaler Substitution im Hamiltonoperator berücksichtigt. Die Bewegungsgleichungen von  $P_{\mathbf{k}}$  haben dann die Form

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} P_{\mathbf{k}} = \left( \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}} - j_{\mathbf{k}} A_{\text{THz}} + \frac{|e|^2}{2\mu} A_{\text{THz}}^2 \right) P_{\mathbf{k}} - (1 - f_{\mathbf{k}}^e - f_{\mathbf{k}}^h) \Omega_{\mathbf{k}} + \Gamma_{\mathbf{k}}^{v,c} + \Gamma_{v,c;\mathbf{k}}^{QED}. \quad (2.7)$$

Die erste Klammer auf der rechten Seite der Gleichung enthält die renormalisierte kinetische Energie der Ladungsträger  $\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ , den THz induzierten Strom  $j_{\mathbf{k}} A_{\text{THz}}$  mit dem Vektorpotential des THz-Feldes  $A_{\text{THz}}$  und dem Dipolmatrizelementes des Stromes  $j_{\mathbf{k}}$ . Außerdem ist hier ein Term enthalten, der den ponderomotorischen Strom  $\frac{|e|^2}{2\mu} A_{\text{THz}}^2$  beschreibt. Dieser Term beschreibt das Folgen der Ladungsträger mit dem elektrischen Wechselfeld. Bei optischen Wechselfeldern kann dieser Term häufig vernachlässigt werden, da dort die Oszillationsgeschwindigkeit des Feldes so hoch ist, dass die Ladungsträger dem externen Feld nicht mehr folgen können. Für Felder im THz Frequenzbereich gilt diese Näherung allerdings nicht mehr. Daher können Näherungen die typischerweise für optisch angeregte Systeme gemacht werden (rotating wave approximation<sup>1</sup>) nicht angewendet werden. Der zweite Term bildet sich aus dem Phasenraumfüllfaktor  $(1 - f_{\mathbf{k}}^e - f_{\mathbf{k}}^h)$  multipliziert mit der verallgemeinerten Rabi-Frequenz  $\Omega_{\mathbf{k}}$  [16]. Dieser Term beschreibt sowohl das Ausbleichen der Absorption durch Pauli-Blockade angeregter Ladungsträger, als auch die optische Verstärkung eines Materials mit Ladungsträgerinversion. Die letzten Terme,  $\Gamma_{\mathbf{k}}^{v,c} + \Gamma_{v,c;\mathbf{k}}^{QED}$ , enthalten wieder die Mehrteilchenkorrelationen. Sie beschreiben damit unter Anderem die

---

<sup>1</sup>engl.: rotierende Wellen Näherung

anregungsinduzierte Dephasierung der Polarisierung, Aufgrund der zusätzlichen Coulomb und Phonon Streukanäle.

Das elektromagnetische Feld  $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_{\text{opt}}(\mathbf{r}, t) + \mathcal{E}_{\text{THz}}(\mathbf{r}, t)$  für die Propagation linear polarisierten Lichtes senkrecht zur Oberfläche der Probe kann damit, wie schon im letzten Abschnitt beschrieben, aus der Wellengleichung bestimmt werden:

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 |\xi(\mathbf{r})|^2 \left( \frac{\partial^2 P_{\text{opt}}(\mathbf{r})}{\partial t^2} + \frac{\partial J(\mathbf{r})}{\partial t} \right). \quad (2.8)$$

Dabei ist der Ladungsträgerstrom  $J$  in der Probe durch die Summe des THz induzierten Stromes, sowie des ponderomotorischen Stromes gegeben.

### 2.1.2 Zeitskalen

Die Antwort eines Halbleiters auf einen optischen Impuls lässt sich in verschiedene zeitliche Bereiche aufteilen. Zu frühen Zeiten führt, wie durch die Maxwellgleichungen beschrieben, das elektrische Feld des Impulses zur Erzeugung einer makroskopischen Polarisation  $\mathbf{P}$  in der Probe. Diese Polarisation ist kohärent zur optischen Anregung. Der Zeitbereich in dem Polarisation im Material erzeugt wird ist durch die Länge<sup>2</sup> der optischen Anregung gegeben und beträgt bei den hier dargestellten Messungen meist 80 fs bis 120 fs. Sobald eine Polarisation in dem Material erzeugt wird, fängt diese an durch Streuprozesse der mikroskopischen Oszillatoren zu dephasieren. Dies geschieht zum Beispiel Aufgrund von Coulomb Wechselwirkung mit Kristalldefekten, angeregten Ladungsträgern oder durch Streuung an Phononen. Diese Dephasierung der makroskopischen Polarisation ist im einfachsten Fall durch einen exponentiellen Zerfall beschreibbar. Die Zeitkonstante ( $T_2$ ) für diesen Zerfall hängt von der Struktur und Qualität der Probe ab und variiert von  $\approx 10$  ps für die Exzitonresonanzen in GaAs [17], bzw. wenigen hundert fs in Ge bis hin zu wenigen fs für Kontinuumszustände [17]. Im Falle einer zusätzlichen Anregung der Probe, wird die zeitliche Entwicklung der Polarisation allerdings potentiell eine reiche Dynamik aufweisen.

Die kohärente Polarisation führt zu der Entstehung von Besetzung im Sinne angeregter Ladungsträger. Der Teil der makroskopischen Polarisation, der nicht in Ladungsträgerbesetzung umgewandelt wird, koppelt zurück an das elektrische Feld und führt so zu einer teilweisen kohärenten Emission des vorher absorbierten Lichtes.

<sup>2</sup>Die angegebene Zeit ist die zeitliche Halbwertsbreite der verwendeten Laserimpulse.

Nach der Ausbildung der Besetzung hat das Ladungsträgersystem allerdings noch nicht seinen Gleichgewichtszustand erreicht. Daher wird im Folgenden die noch durch die Anregungsenergie bestimmte Verteilung durch Coulombstreuung und Streuung an vornehmlich akustischen Phononen ( $LA^3$ ) in eine thermische Fermiverteilung übergehen. Je nach der Effizienz der Phononstreuung in dem Probenmaterial findet dieses in unter 100 fs für GaAs oder auf bis zu 500 fs in Germanium statt[18]. Eine Beispielmessung einer solchen nichtthermischen Ladungsträgerrelaxation ist in Abbildung 2.1 gezeigt. Zu sehen ist die differenzielle Absorption einer Germanium Quantenfilmprobe in einer 2D Farbschattendarstellung in Abhängigkeit der Zeit und der Energie. Dabei bedeutet eine rote Einfärbung eine Erhöhung und eine blaue Farbe eine Erniedrigung der Absorption. Der Grund für diesen großen Unterschied liegt darin, dass GaAs als polarer Halbleiter durch Fröhlich-Wechselwirkung einen wesentlich effizienteren Phonon-Streumechanismus nutzen kann. In Germanium dagegen steht nur die Deformationspotentialstreuung zur Verfügung.

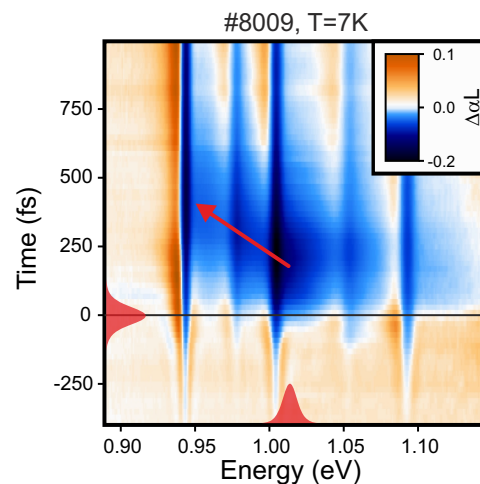


Abbildung 2.1: Änderung der Absorption der Probe #8009 nach Anregung bei 1,01 eV (rote Fläche). In den ersten 100 fs führt die Anregung zunächst zu einem starken Ausbleichen der Absorption um die Anregungsenergie herum. In den folgenden 500 fs kann eine Streuung der Ladungsträger und somit der Absorptionsreduktion hin zur direkten Bandkante beobachtet werden (roter Pfeil). Gleichzeitig kommt es zu einer Streuung der angeregten Ladungsträger zum absoluten Leitungsbandminimum am L-Punkt, und damit zu einem Verschwinden des Ausbleichungssignals.

Im folgenden kühlen die Elektronen- und Lochverteilungen auf die Temperatur des Kristallgitters ab, indem sie die überschüssige Energie an Phononen abgeben. Im Bild ist dies als eine Wanderung des Ausbleichsignals hin zu kleineren Energien zu erkennen. In Abhängigkeit von der Elektronen- und Lochdichte, sowie den Eigenschaften des Materials kann es dabei auch zu einer Bildung von gebundenen Elektron-Loch-

<sup>3</sup>steht für longitudinal akustisch

Paaren (Exzitonen) kommen.

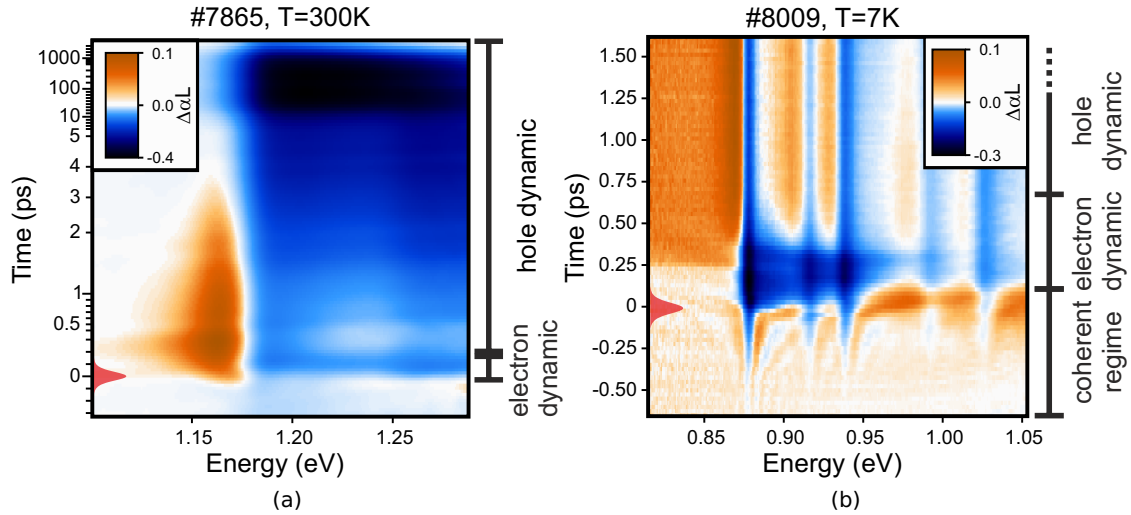


Abbildung 2.2: (a) zeigt die differentielle Absorption der Probe #7865 (SiGe) unter optischer Anregung mit 1,5 eV Photonen. Die Antwort der Probe lässt sich in zwei Zeitregimes aufteilen. Im ersten ist die Antwort der Probe durch das Elektronen am  $\Gamma$ -Punkt bestimmt. Nachdem diese zu L-Punkt gestreut sind, wird die Lochdynamik der dominante Prozess. Die differentielle Absorption der Probe #8009 (Ge-Quantenfilme) die in **b** gezeigt ist, offenbart zusätzlich zu **a** ein weiteres Regime, in dem kohärente Effekte beobachtet werden können. Diese Messung zeigt beispielsweise kohärente Oszillationen vor der Zeitnull.

Germanium als indirekter Halbleiter unterscheidet sich jedoch etwas von den direkten Halbleitern. Aufgrund der sehr effizienten Interbandstreuung der Elektronen von  $\Gamma$ - zum L-Punkt kommt es zum einen zu einer deutlich schnelleren Dephasierung der Polarisation. Zum anderen führt dieser zusätzliche Streukanal zu einer Aufheizung der Elektronenverteilung, die sich im Leitungsbandtal am L-Punkt ansammelt. Auf die optisch beobachtbaren Übergänge am  $\Gamma$ -Punkt haben diese Elektronen aber nur noch indirekt einen Einfluss. Abbildung 2.2 zeigt Beispielmessungen an der SiGe Probe #7865, sowie der Ge-Quantenfilmprobe #8009, die das Ausbilden der verschiedenen Regimes zeigt.

### 2.1.3 Bandentartungen und optische Auswahlregeln

In typisch Halbleitern wie beispielsweise GaAs, Ge oder Si wird das Valenzbandmaximum am  $\Gamma$ -Punkt aus p-artigen ( $l=1$ ) Zuständen gebildet[19]. Aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung ( $l=1$ ,  $s=1/2$ ) wird die Entartung dieser Zustände aufgehoben und es bilden sich zwei neue Subbänder aus. Die neu ausgebildeten Zustände sind durch ihren Gesamtdrehimpuls  $j = |j|$  mit  $\mathbf{j} = \mathbf{l} + \mathbf{s}$  und ihre Magnetquantenzahl  $m_j$

definiert. Je nach Orientierung von  $\mathbf{l}$  und  $\mathbf{s}$  kann  $j$  dann den Wert  $3/2$  und  $1/2$  annehmen. Mit der Schreibweise  $|j; m_j\rangle$  für die neuen Zustände erhält man damit die folgenden Niveaus:

Für die Zustände mit  $j=3/2$  ergeben sich die beiden Leichtlochzustände  $|3/2; 1/2\rangle$  und  $|3/2; -1/2\rangle$ , sowie die Schwerlochzustände  $|3/2; 3/2\rangle$  und  $|3/2; -3/2\rangle$ . Die Bänder, die sich aus den Leicht- und Schwerlöchern bilden, sind zunächst alle entartet. Eine Verspannung des Kristallgitters führt aber typischerweise zu einer Aufhebung der Entartung. Der  $j=1/2$  Zustand ist zweifach entartet und hat die Zustände  $|1/2; 1/2\rangle$  und  $|1/2; -1/2\rangle$ . Das Band, das sich aus diesen Zuständen bildet, wird Split-off-Band genannt und ist energetisch etwas unterhalb der  $j=3/2$  Bänder zu finden.

Die möglichen optischen Übergänge zwischen dem Valenz- und Leitungsband müssen den Dipolauswahlregeln gehorchen. Da das Leitungsband s-artig ist ( $l=0$ ) sind mit zirkular polarisiertem Licht die Übergänge mit  $\Delta m_j = \pm 1$  möglich. Wie Abbildung 2.3 zeigt, sind die angeregten Ladungsträger bei resonanter Anregung des Leicht- oder Schwerlochbandes spinpolarisiert. Da es in den Halbleiterkristallen keine ausgezeichnete Richtung gibt, führt die Anregung mit linear polarisiertem Licht stets zu einer Anregung beider Spinsubbänder.

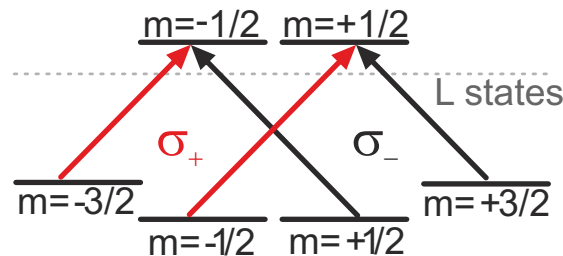


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der möglichen optischen Übergänge zwischen Valenz- und Leitungsbandzuständen. Bei den Valenzbandzuständen sind die Leichtloch- ( $m_{lh}$ ) und Schwerlochzustände ( $m_{hh}$ ) gezeigt. Mit zirkular polarisiertem Licht ( $\sigma_+$  oder  $\sigma_-$ ) kann bei resonanter Anregung jeweils nur eines der beiden Spinsubbänder angeregt werden.

## 2.2 Eigenschaften von Germanium

Germanium hat sich in den letzten Jahren zu einem Hoffnungsträger für die Siliziumphotonik entwickelt. Für die Realisierung von integrierten opto-elektronischen Schaltkreisen werden Lichtquellen, elektro-optische Modulatoren und Licht-Detektoren

benötigt. Die am schwierigsten zu realisierenden Komponenten sind dabei die Modulatoren und vor allem die Lichtquelle. Im Germaniumsystem konnten diese bereits demonstriert werden. Kuo et al. gelang es 2005 einen optischen Modulator mit verspannten Germanium-Quantenfilmen zu realisieren [8]. Mittlerweile wurden an solchen Modulatoren Schaltzeiten von bis zu 10 GHz berichtet [20]. Auch die ersten optisch gepumpten Laser konnten demonstriert werden [9, 21].

### 2.2.1 Bandstruktur von Ge, GaAs und Si

Typische Verbindungshalbleiter die für optische Elemente eingesetzt werden, wie beispielsweise GaAs, haben eine direkte Bandlücke. Das Valenzband Maximum und das Leitungsband Minimum befinden sich in solchen Halbleitern am gleichen Punkt im  $\mathbf{k}$ -Raum. Die indirekten Halbleiter Silizium und Germanium besitzen im Gegensatz dazu das Leitungsbandminimum nahe des X-, bzw. am L-Punkt. Ihre Bandstruktur ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Germanium zeichnet sich gegenüber Silizium für optische Anwendungen aus, da sich in diesem Material im Zentrum des reziproken Raumes ( $\Gamma$ -Punkt) sowohl ein lokales Leitungsbandminimum, wie auch das Valenzbandmaximum befindet. Zudem ist dieses Minimum nur 140 meV von den absoluten Minima an den L-Punkten entfernt. [22] Bei Silizium hingegen zeigt das Leitungsband im Zentrum der Brillouinzone gerade einen Sattelpunkt.

Das lokale Leitungsbandminimum am  $\Gamma$ -Punkt führt dazu, dass Germanium viele Eigenschaften aufweist, die direkten Halbleitern ähnlich sind. Bei der direkten Bandlücke in unverspanntem Germaniumvolumenmaterial sind Valenz- und Leitungsband bei 300 K um 800 meV voneinander getrennt. Durch das Wachstum von Germanium Quantenfilmen und die damit entstehende räumliche Begrenzung (engl.: confinement) verschiebt sich die Energie des direkten Bandüberganges zu höheren Energien hin. So können auch gängige Telekomfrequenzen wie das E-Band (1360 - 1460 nm, 0,85 - 0,91 eV) erreicht werden.

Bei den Valenzbändern unterscheiden sich Germanium am  $\Gamma$ -Punkt kaum von dem direkten Halbleiter GaAs. So findet man ein Leichtloch-, ein Schwerloch- und ein energetisch aufgespaltenes „split-off“-Band. In einem unverspannten Germaniumkristall sind dabei, wie bereits gesagt, das Leichtlochband und das Schwerlochband im Zentrum des  $\mathbf{k}$ -Raumes entartet. Verspannt man jedoch den Kristall wird diese Entartung aufgehoben. Auf die Eigenschaften verspannter Germaniumschichten wird im nächsten Kapitel näher eingegangen werden.

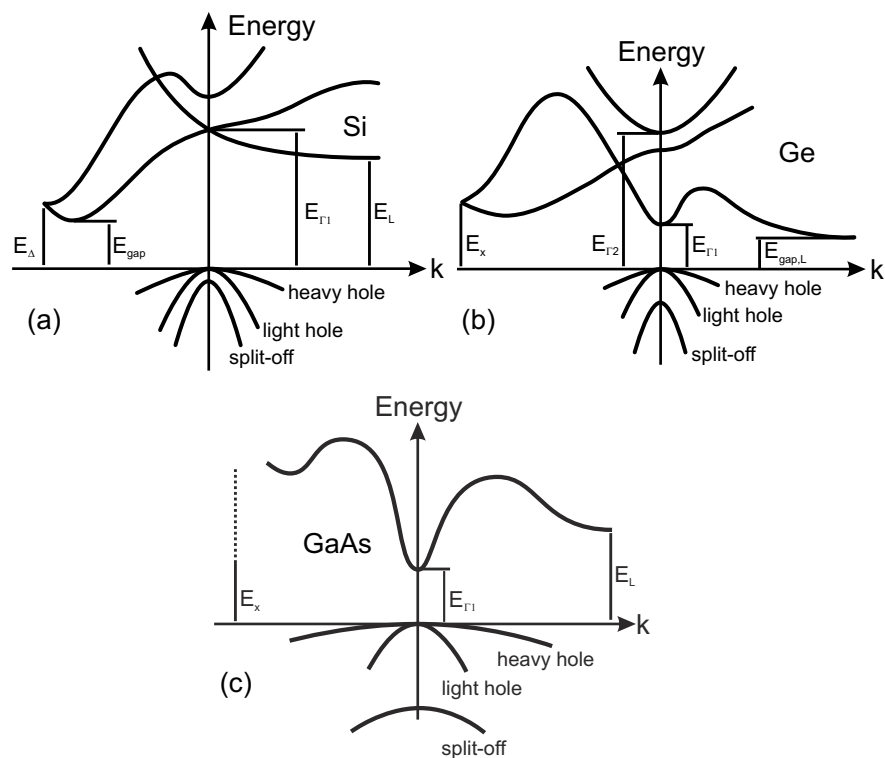


Abbildung 2.4: Bandstrukturen der Halbleiter Silizium, Germanium und GaAs. Silizium und Germanium besitzen eine indirekte Bandlücke, während GaAs eine direkte Bandlücke aufweist. Im Falle von Silizium ist der energetische niedrigste Übergang vom Valenzband bei  $\mathbf{k} = 0$  zum Leitungsbandminimum am X-Punkt. In der Bandstruktur von Germanium liegt das Leitungsbandminimum am L-Punkt. Im Gegensatz zu Silizium weist Germanium zusätzlich ein lokales Leitungsbandminimum am  $\Gamma$ -Punkt auf.



### 2.2.2 Verspannte Schichten

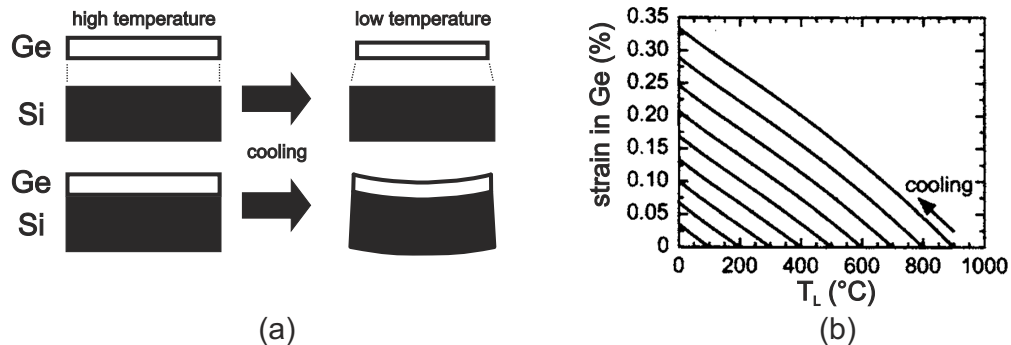


Abbildung 2.5: **a** Wächst eine Germaniumschicht entspannt auf ein Substrat mit abweichenden thermischen Ausdehnungskoeffizienten, verspannt sich die Germaniumschicht beim Abkühlen. Die sich ausbildende Verspannung ist dabei abhängig bei der Wachstumstemperatur, wie in **b** dargestellt. (aus Ref. [23])

Eine Möglichkeit diese Verspannung zu erhalten ist es, eine Germaniumschicht entspannt auf ein geheiztes Siliziumsubstrat zu wachsen. Durch die verschiedenen großen Ausdehnungskoeffizienten von Silizium und Germanium kommt es dann beim Abkühlen des Substrates zu einer Verspannung der Germaniumschicht wie in Abbildung 2.5 dargestellt. Die erzielte Verspannung kann durch die Wahl der Wachstumstemperatur verändert werden. Diese Methode funktioniert jedoch nur für hinreichend dicke Germaniumschichten. Wächst man nur dünne Schichten, wie Quantenfilme, werden diese pseudomorph auf dem Substrat wachsen. Die Germaniumschicht wächst also in der Substratebene mit der Gitterkonstante von Silizium auf das Substrat auf, wären sie in Wachstumsrichtung ihre eigene Gitterkonstante einnimmt. Die so erzielte biaxiale Verspannung ist also unabhängig von der Wachstumstemperatur und kann nur durch die Wahl des Substrates verändert werden. Sind die Germaniumschichten zu dick, wird nach einem anfänglichen pseudomorphen Schicht, letztendlich eine Germaniumschicht in der energetisch bevorzugten, unverspannten Form wachsen.

Die Verspannung des Kristallgitters führt auch zu einer Änderung in der Bandstruktur des Germaniumkristalls. So wird die Entartung von Schwerloch- und Leichtlochband am  $\Gamma$ -Punkt aufgehoben, wie in Fig. 2.6 gezeigt. Bei einer kompressiven Verspannung der Germaniumschicht ist eine Blauverschiebung der direkten Übergänge zu beobachten, wobei das Schwerlochband den energetisch niedrigsten Übergang ausbildet. Bei tensiler Verspannung verhält es sich genau entgegengesetzt. Sowohl das Leichtloch- als auch das Schwerlochband schieben zu niedrigeren Energien und diesmal bildet das Leichtlochband den energetisch niedrigsten Übergang aus. Neben

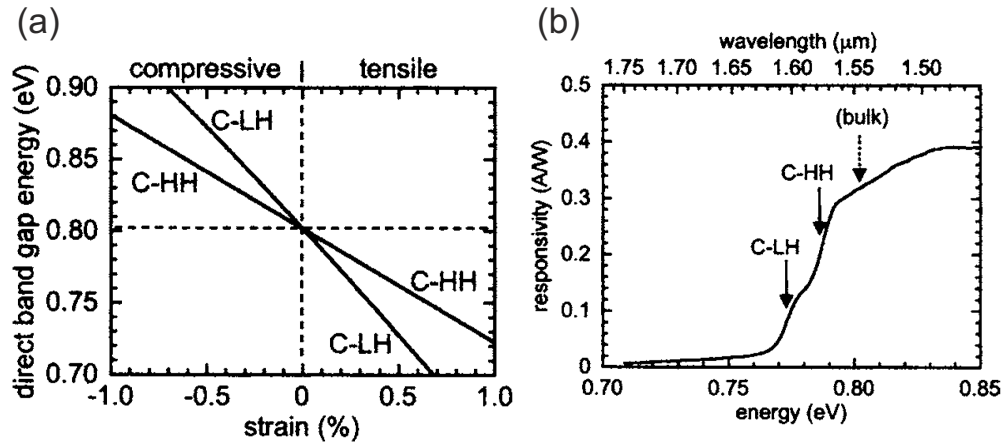


Abbildung 2.6: In verspannten Germaniumschichten ist die Entartung von Leicht- und Schwerlochband aufgehoben. **a** Bei einer kompressiven Verspannung führt dies zu einer Blauverschiebung, bei tensiler Verspannung zu einer Rotverschiebung des direkten Übergangs. Beispielsweise sind in **b** die linearen Absorptionen einer tensil verspannten Probe gezeigt. Bei kompressiver Verspannung dreht sich die Reihenfolge von Leicht- und Schwerlochzuständen um. Dies ist Beispielsweise in Abb. 2.17 zu erkennen. (Graphen aus Ref. [23])

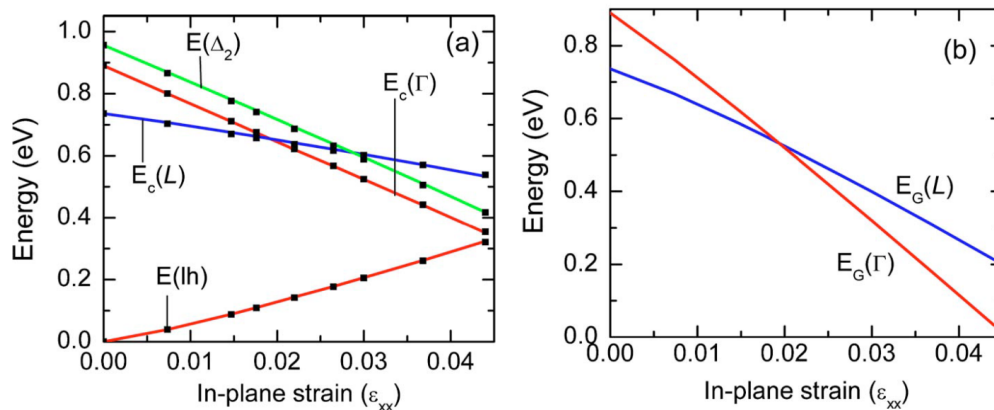


Abbildung 2.7: **a** Abhängigkeit der Bandextrema von der Verspannung der Germaniumschicht. Die Leitungsbandtäler an den L-Punkten senken sich mit steigender Verspannung langsamer ab als das Tal am  $\Gamma$ -Punkt. Bei einer Verspannung von 1,9% sind beide Bänder auf der gleichen Energie und für noch höhere Verspannungen wird die Germaniumschicht sogar direkt. Teil **b** zeigt die Energiedifferenz  $E_G$  für den indirekten und den direkten Bandübergang als Funktion der Verspannung. (aus Ref. [10])

der Aufhebung der Spinentartung der Lochbänder sind auch bei den Leitungsbändern Verspannungsabhängigkeiten zu erkennen. Abbildung 2.7 zeigt die berechnete Abhängigkeit der Bandextrema von der Verspannung. Es fällt auf, dass das Leitungsband Minimum am  $\Gamma$ -Punkt im Vergleich zu denen an den L-Punkten stärker abgesenkt wird. Auch die Minima an den  $\Delta$ -Punkten verringert sich, jedoch ähnlich stark wie am  $\Gamma$ -Punkt, so dass deren energetische Abstand quasi konstant bleibt. Bei einer Verspannung von 1,9% befinden sich das  $\Gamma$ - und die L-Minima bei gleicher Energie. Für noch höhere Verspannungen sagt die Theorie sogar einen Übergang von Germanium zu einem direkten Halbleiter voraus [10]. Abbildung 2.8 zeigt die berechnete Bandstruktur für diesen Fall.

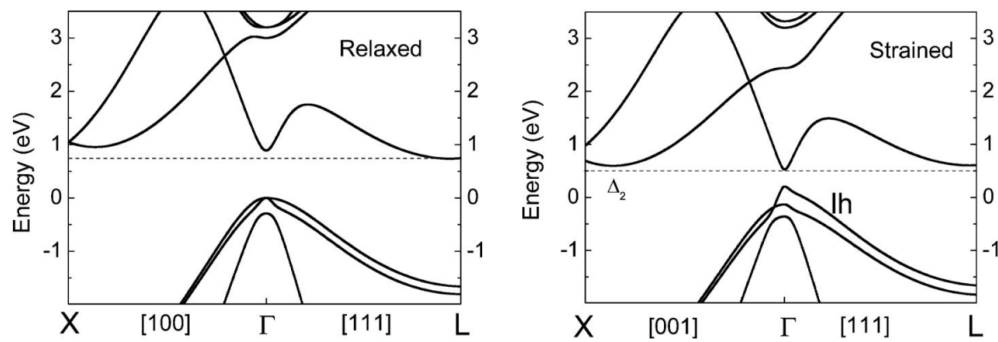


Abbildung 2.8: Vergleich der Bandstruktur von relaxiertem und tensil verspannten Germanium. Neben der Aufhebung der Entartung von Leicht- und Schwerlochband fällt zusätzlich die Reduktion des energetischen Abstandes zwischen  $\Gamma$ - und L-Punkt Minimum auf. Für die tensil Verspannte Bandstruktur wurde eine Verspannung von 3% in der Quantenfilmebene angenommen. (aus Ref. [10])

### 2.2.3 Germanium Quantenfilme

Das Wachstum von Germanium-Quantenfilmen bietet einige Vorteile zu 3D Schichten. Zum einen kann man durch Wahl der Quantenfilmdicke Einfluss auf die Confinement-Energie nehmen und damit auf die direkte Bandlücke. Zudem können die dünnen Schichten in einer viel besseren Qualität gewachsen werden. Im Gegensatz zu den Volumenschichten wachsen Quantenfilme aufgrund ihrer geringen Dicke pseudomorph auf das Kristallgitter des Substrates. In Wachstumsrichtung hingegen wird sich die Gitterkonstante so einstellen, wie es energetisch für den Kristall am günstigsten ist.

Um Germanium-Quantenfilme hoher Qualität zu erhalten, können diese aufgrund des großen Unterschiedes in der Gitterkonstante von 3,9% nicht direkt auf Silizium gewachsen werden.

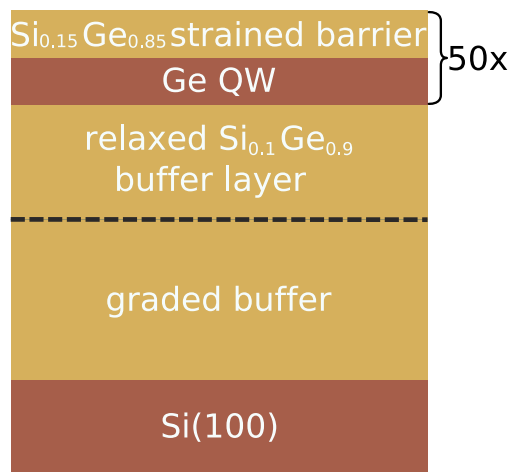


Abbildung 2.9: Schematischer Aufbau der Ge Quantenfilmprobe #8009. Die Quantenfilme werden auf ein virtuelles Substrat gewachsen und durch SiGe Barrieren von einander getrennt.

Daher nutzt man ein virtuelles Substrat. Auf eine Silizium [100] Oberfläche wird zunächst eine Pufferschicht aus einer  $Si_{1-x}Ge_x$  Legierung mit kontinuierlich steigenden Germaniumanteil  $x$  aufgewachsen. Um die Zahl der Gitterfehler in dieser Schicht klein zu halten, wird  $x$  mit nur ca.  $0,07 \mu^{-1}m$  sehr langsam variiert. Typische Pufferschichten der vermessenen Proben haben eine finale Stöchiometrie von  $Si_{0,1}Ge_{0,9}$  und eine Dicke von  $13 \mu m$ . Um zusätzlich die Schichtqualität weiter zu erhöhen, wird zum Ausheilen von Gitterfehlern auf diese Schicht eine  $2 \mu m$  dicke  $Si_{0,1}Ge_{0,9}$  aufgewachsen. Die Oberfläche dieser Schicht bildet dann das relaxierte virtuelle Substrat für die Quantenfilme. Darauf werden nun abwechselnd  $14.3 nm$  dicke Ge Quantenfilme und  $19.8 nm$  dicke  $Si_{0,15}Ge_{0,85}$  Barrieren aufgewachsen. Die Dicke der Barrieren ist gerade so gewählt, dass sich die mechanischen Kräfte zwischen den Schichten gerade kompensiert [24]. Auf diese Weise können auch Mehrfachquantenfilme mit hoher Strukturqualität gewachsen werden. Abbildung 2.9 zeigt den Aufbau der experimentell vermessenen Germanium Quantenfilmprobe #8009. In einer solchen Probe ergibt sich eine tensile Verspannung der Quantenfilme. Außerdem bilden die Quantenfilme eine Typ-I Bandanordnung aus, d.h. die Bandextrema des Valenzbandes, sowie der Lochbänder liegen in der gleichen Schicht. Die globalen Leitungsbandminima an den L-Punkten liegen nochmals unterhalb des Valenzbandminimums am  $\Gamma$ -Punkt. Abbildung 2.10 zeigt das Ergebnis einer  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Rechnung für eine solche Probe. Es finden sich mehrere gebundene Zustände für das Leitungsband und die Valenzbänder.

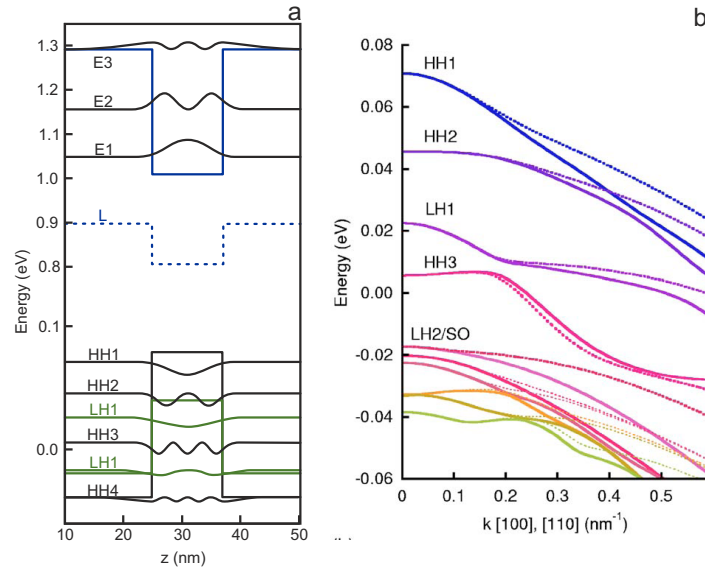


Abbildung 2.10: Bandstruktur eines verspannten Germanium Quantenfilmes. In **a** ist die energetische Lage der Bandextrema im Ortsraum dargestellt. Im Leitungsband so wie in dem Schwerloch und Leichtlochband bilden sich mehrere gebundene Zustände aus. **b** zeigt die Abhängigkeit der Bandextrema von  $k$  in die Gitterrichtungen [100] und [110] an den Lochzuständen. (aus Ref. [25])

## 2.3 Experimentelle Grundlagen

Die in dieser Arbeit vermessenen Effekte unterscheiden sich stark in den Zeitskalen in denen sie ablaufen. Diese erstrecken sich von wenigen zehn fs bis hin zu einigen ns. Generell kann bei den betrachteten Prozessen zwischen kohärenten und inkohärenten Abläufen unterschieden werden. Kohärente Prozesse werden durch die Dynamik der Polarisation in einer optisch angeregten Probe bestimmt. Die in diese Kategorie fallen hier Experimente mit THz-Störung und solche mit einer optischen Störung. Aufgrund der niedrigen Energie der THz-Photonen beobachtet man in diesem Fall vor allem intraexzitonische Übergänge in der Polarisation. Bei einer optischen Störung des Systems kommen dagegen Effekte aufgrund von Pauliblockade sowie Bandkantenrenormalisierung und Ladungsträgerabschirmung zum tragen. Der Zeitbereich in dem diese Effekte beobachtet werden können ist durch das Dephasieren der kohärenten Polarisation beschränkt. Die Dynamik findet also im Zeitbereich von wenigen zehn fs bis hin zu einigen ps statt. In dieser Arbeit fallen die Messungen zum dynamischen Starkeffekt (3.1.1), sowie die kohärente THz Spektroskopie (3.1) in diesen Bereich.

Die inkohärenten Prozesse dagegen spielen sich nach der Dephasierung der Polaris-

tion ab, also in einem Zeitbereich von einigen hundertens fs bis zur Rückkehr der Probe in den Ausgangszustand vor der Anregung. Wobei eine obere zeitliche Beschränkung von einigen ns durch die verwendeten experimentellen Methoden gegeben sind. Die beobachtete Dynamik in diesem Regime ist durch das Thermalisieren, Abkühlen und Rekombinieren der angeregten Ladungsträger bestimmt. In diese Kategorie fallen die Messungen zur optischen Verstärkung (4.3), zur Lochabkühlung (4.2), der Spinrelaxation (4.1) und die inkohärente THz Spektroskopie (4.2.4).

### 2.3.1 Anrege-Abfrage Spektroskopie

Um das Spektrum der verschiedenen Anwendungen abzudecken, benötigt es einer experimentellen Technik, welche in der Lage ist, die breite Zeitskala vermessen zu können. Die Zeitauflösung muss gut genug sein, um Prozesse von nur wenigen zehn fs auflösen zu können. Auf der anderen Seite muss das vermessbare Zeitfenster groß genug sein, um die Ladungsträgerdynamik in Probe über ns zu beobachten. Mit dieser Randbedingung ist die Anrege-Abfrage Spektroskopie die Methode der Wahl, da sie eine hohe zeitliche Auflösung mit einem großen Messbereich verbindet. In dieser Spektroskopieart wird die transiente Transmission durch die Probe spektral vermessen. Besonders eignet sie sich damit für die Bestimmung der Ladungsträgerdynamik, da das Ladungsträgersystem einen direkten Einfluss auf die Transmission durch die Probe hat. Die Probe wird wie in Abbildung 2.11 dargestellt, zuerst mit einem ersten Laserimpuls angeregt und anschließend wird die Absorption der Probe mit einem zweiten Laserimpuls abgefragt. Um die zeitliche Dynamik der Absorptionsänderung zu bestimmen, muss dieses Experiment für verschiedenen zeitlichen Versatz zwischen Anregung und Abfrage der Probe wiederholt werden. Optimaler Weise sollte die zeitliche Auflösung in der Nähe der Dephasierungszeit der optisch angeregten Polarisation in der zu untersuchenden Probe liegen. In typischen Halbleiterproben liegt diese Zeit im Bereich von einigen zehn Femtosekunden bis hin zu einigen Piko-sekunden. Laserimpulse in dieser Zeitskala können heute vergleichsweise leicht mit Ti:Saphir Lasern realisiert werden. Aufgrund des konstanten Zeit-Bandbreite Produktes bei Laserimpulsen <sup>4</sup> muss jedoch ggf. zwischen spektraler Breite und Dauer des Anregungsimpulses abgewogen werden.

Durch die Wechselwirkung des Abfrageimpulses mit der Probe kommt es dazu, dass ein Teil des Lichtes reflektiert oder absorbiert wird. Die normierte Transmission durch

---

<sup>4</sup>Für bandbreitebegrenzte Laserimpulse mit einer Einhüllenden der Form  $I(t) \propto \text{sech}^2(t)$  gilt ( $\Delta f \cdot \Delta t = 0,44$ )

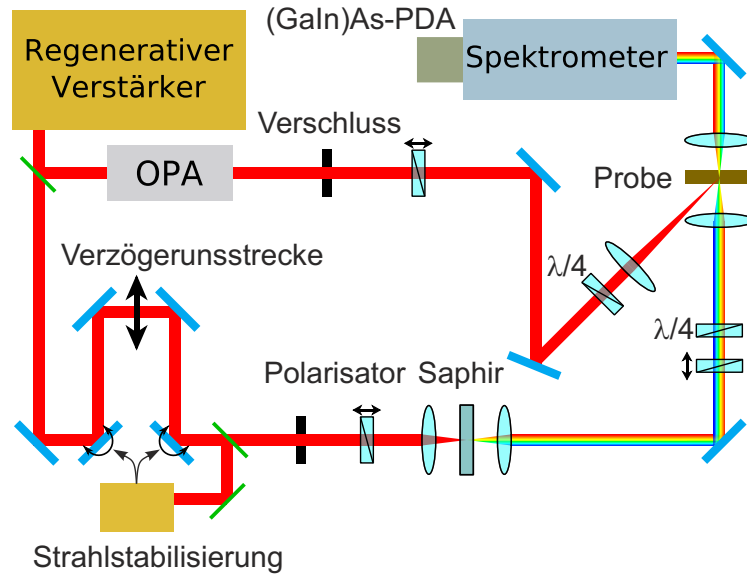


Abbildung 2.11: Experimenteller Aufbau zur Vermessung der transienten Absorption einer Probe. Der Strahl eines Ti:Saphir Verstärkersystemes wird in zwei Strahlen aufgeteilt, die zur Anregung und Abfrage des Materials dienen. Eine OPA erlaubt eine durchstimmbare Anregungswellenlänge. Durch die Erzeugung eines Weißlichtsuperkontinuums kann die Absorption der Probe gleichzeitig über einen großen spektralen Bereich abgefragt werden. Mithilfe von super-achromatischen  $\lambda/4$ -Plättchen kann zwischen linearer und zirkularer Anregung/Abfrage gewählt werden.

die Probe ergibt sich dann unter Berücksichtigung der Reflexion  $R$  und der Absorption  $A$  als  $T = 1 - R - A$ . Wird die Probe nun angeregt, führt dies zu einer Änderung  $\Delta T$  in der Intensität  $T$  des transmittierten Lichtes. Die Änderung der Transmission wird teilweise auf die Absorption und teilweise auf die Reflexion zurück zu führen sein. Dabei spielt die Änderung der Reflexion eine untergeordnete Rolle, da sie häufig klein gegenüber der Änderung der Absorption ist. Wählt man zudem eine Versuchsgeometrie, in der der Abfragestrahl im Brewsterwinkel auf die Probe trifft, wird der Anteil des reflektierten Lichtes minimiert. Daher wird die Reflexion häufig als konstant angenommen. Sind bei einer Messung die Absolutwerte der Absorption von Bedeutung, sollte jedoch stets die Gültigkeit dieser Näherung sichergestellt werden. Bei der Beschreibung der Änderung der Transmission wird häufig die Größe  $\frac{\Delta T}{T}$  verwendet, also die auf die ungestörte Transmission normierte Änderung. Diese ist definiert als

$$\frac{\Delta T}{T}(\omega) = \frac{T_{\text{ppt}}(\omega) - T_{\text{prt}}(\omega)}{I_{\text{prt}}(\omega)}. \quad (2.9)$$

Dabei ist  $T_{\text{prt}}(\omega)$  das ungestörte Transmissionsspektrum des Abfragelichtes und  $T_{\text{ppt}}(\omega)$  die Transmission in Anwesenheit des Anregepulses.

Für ein Volumenmaterial der Länge  $L$  und dem Absorptionskoeffizient  $\alpha(\omega)$  kann man unter Vernachlässigung der Reflexion, dieses auch in der Form des Bouguer-Lambertschen Gesetzes schreiben.

$$\begin{aligned} T_{prt}(\omega) &= I_0 e^{-\alpha(\omega)L} \\ T_{ppt}(\omega) &= I_0 e^{-(\alpha(\omega) + \Delta\alpha(\omega))L} \end{aligned} \quad (2.10)$$

Gerade bei niederdimensionalen Systemen wie z.B. Quantenfilmen, muss man allerdings beachten, dass die Angabe einer längenbehafteten Größe wie  $\alpha(\omega)$  nicht sinnvoll ist. In solchen Fällen kann die zusammengefasste Größe  $\alpha L(\omega)$  benutzt werden. Diese Größe hat unter anderem den Vorteil, dass sie linear mit der Zahl der Quantenfilme skaliert. Durch Division der Gleichungen in 2.10 erhält man einen Zusammenhang zwischen  $\alpha L(\omega)$  und den Messgrößen der Form

$$\Delta\alpha L(\omega) = -\ln\left(\frac{T_{ppt}(\omega)}{T_{prt}(\omega)}\right) \quad (2.11)$$

Im Experiment sieht man sich mit diversen störenden Einflüssen konfrontiert, so dass man die Formeln 2.9 und 2.11 mit Korrekturen erweitern muss. Während der Messung von  $T_{prt}(\omega)$  wird neben dem Licht, dass durch die Probe transmittiert wird, auch Licht von der Beleuchtung im Labor mit detektiert. Hinzu kommen noch der Dunkelstrom des Detektors, sowie Offset-Spannungen in der Ausleseelektronik des Detektors. Diese Fehler können behoben werden, indem neben des  $T_{prt}(\omega)$  Spektrums noch ein Hintergrundspektrum ohne Abfrageimpuls  $T_{bg}(\omega)$  aufgenommen wird. Bei der Messung von  $T_{ppt}(\omega)$  misst man mit dem Detektor neben den oben genannten Störquellen zusätzlich noch das Streulicht des Anregeimpulses sowie möglicherweise Photolumineszenz von der Probe. Daher muss auch für  $T_{ppt}(\omega)$  ein eigenes Korrekturspektrum  $T_{pmt}(\omega)$  aufgenommen werden, in dem nur der Anregeimpuls auf die Probe fällt. Damit kann die Transmissionsänderungen also auf folgende Weise bestimmt werden:



$$\begin{aligned}
\Delta\alpha L(\omega) &= -\ln\left(\frac{T_{ppt}(\omega) - T_{pmt}(\omega)}{T_{prt}(\omega) - T_{bg}(\omega)}\right), \\
\frac{\Delta T}{T}(\omega) &= \frac{(T_{ppt}(\omega) - T_{pmt}(\omega)) - (T_{prt}(\omega) - T_{bg}(\omega))}{T_{prt}(\omega) - T_{bg}(\omega)}, \\
\frac{\Delta T}{T}(\omega) &= e^{-\Delta\alpha L(\omega)} - 1.
\end{aligned} \tag{2.12}$$

### Erzeugung des Weißlichtsuperkontinuums

Der für die Abfrage der Absorption der Probe benötigte spektral breite Laserimpuls wird unter Ausnutzung von nichtlinearen Effekten bei der Propagation von ultrakurzen Laserimpulsen in Kristallen erzeugt. Dazu wird ein Teil des primären Laserstrahls in einen Saphirkristall fokussiert. Durch die hohen elektrischen Felder kommt es zu einer Selbstphasenmodulation des Impulses, was zu einer spektralen Verbreiterung des Impulses führt [26]. Das Spektrum eines so gewonnenen Weißlichtkontinuums ist in Abbildung 2.12b gezeigt. Im Falle von den hier untersuchten Germaniumproben liegt der interessante Spektralbereich in der Region von 1100 nm bis 1500 nm. Daher wird das erzeugte Spektrum nachträglich noch mit absorptiven Filtern optimiert. Dazu wurde meist ein Rotglasfilters (Schott RG1000) genutzt, dessen Absorptionscharakteristik ebenfalls in Abbildung 2.12b gezeigt ist.

Dieser so gewonnene Weißlichtimpuls zeigt nun aufgrund dieses Erzeugungsprozesses eine spektrale Abhängigkeit in der Phase des elektromagnetischen Feldes<sup>5</sup>. Dieser Chirp führt dazu, dass ein einzelnes, singuläres Ereignis in Abhängigkeit von der beobachteten Wellenlänge zu verschiedenen Zeiten in der Messung zu kommen scheint.

Daher ist es für Experimente im kohärenten Zeitregime unbedingt notwendig, diese Artefakte nachträglich zu korrigieren. Eine Möglichkeit den Chirp des Impulses zu vermessen, besteht in einer Korrelation des Weißlichtimpulses mit einem weiteren, möglichst kurzen, bandbreitebegrenztem Impuls. Eine solche Messung ist in Abbildung 2.12a dargestellt. Der Weißlichtimpuls wird zusammen mit einem Anregeimpuls auf einen GaP Kristall geleitet. Dabei wurde die Energie des Anregeimpulses so gewählt, dass eine Anregung des GaP nur über eine Zweiphotonenabsorption möglich ist. Sind beide Impulse zeitgleich in der Probe, können über Zweiphotonenabsorption aus dem Anrege- und Abfrageimpuls Ladungsträger in der Probe angeregt werden.

<sup>5</sup>chirp - engl. Zwitschern, Zirpen

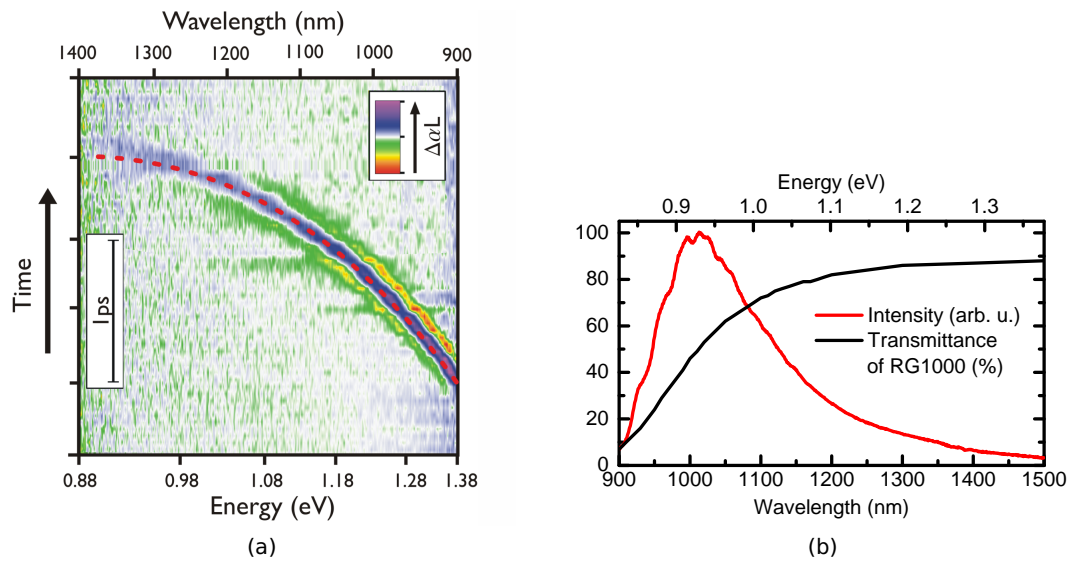


Abbildung 2.12: **a** zeigt die Vermessung des Chirps des Abfrageimpulses mithilfe der Zweiphotonenabsorption in GaP. Gezeigt ist hier die differentielle Absorption  $\Delta\alpha L$  in Falschfarbendarstellung. Dabei bedeutet eine blau-lila Farbe Erhöhung der Absorption, wohingegen die Farben von grün bis rot für eine Erniedrigung der Absorption stehen. **b** zeigt das Spektrum des erzeugten Weißlichtimpulses (rot), sowie das Transmissionspektrum des häufig verwendeten Rotglasfilters RG1000.

Dieses zeigt sich in der Transmission des Abfrageimpulses als eine erhöhte Absorption der Probe (blaue Farbe in Abbildung 2.12a). Damit kann nun die Phase bei den einzelnen Energien bestimmt werden (rot gestrichelte Linie), welche dann nachträglich zu einer numerischen Korrektur der Daten genutzt wird. In Halbleiterproben mit stark ausgebildeten exzitonischen Resonanzen kann man jedoch häufig die kohärenten Oszillationen an den Exzitonresonanzen für diesen Zweck nutzen. Bei kleinen zeitlichen Versätzen zwischen Anrege- und Abfrageimpuls kommt es in der Transmission durch die Probe zu einer spektralen Modulation in dem Bereich um die einzelnen Resonanzen. Die spektrale Wellenlänge dieser Modulation divergiert bei gleichzeitigem Eintreffen der beiden Impulse, so dass sie als eine interne Uhr in der Probe wirkt. Der Zeitpunkt der Divergenz dieser Signaturen kann wieder als eine Grundlage für eine nachträgliche numerische Korrektur der Daten genutzt werden.

### Interpretation von differentiellen Absorptionssignalen

Da in dieser Arbeit häufig der Verlauf von differentiellen Absorptionen diskutiert wird, soll an dieser Stelle kurz auf die häufig beobachteten Signalverläufe eingegangen werden.

Beobachtet man die spektrale Verschiebung einer Resonanz, so führt dies zu einer

Reduktion der Absorption bei der Ausgangsenergie und einer Erhöhung an der Stelle zu der die Resonanz verschoben wurde. Da die differenzielle Absorption gerade die Differenz zwischen der Absorption der unangeregten und der angeregten Probe zeigt, ergibt sich ein sinusartiger Verlauf. Diese Verläufe sind in Abbildung 2.13a und 2.13b gezeigt. Anhand der Form des Signals kann so zwischen einer Rotverschiebung und einer Blauverschiebung der Resonanz unterschieden werden. Andere häufig beobach-

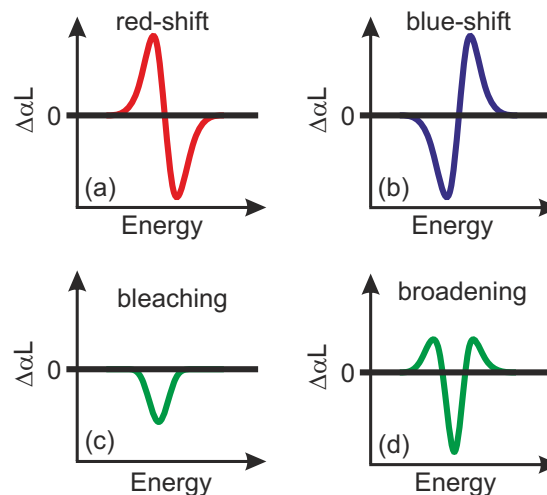


Abbildung 2.13: Die Abbildung zeigt den Verlauf der differentiellen Absorption für vier häufig vorkommende Signale. Teil **a** und **b** zeigen den Verlauf für eine Rot-, bzw. Blauverschiebung der Resonanz. In dem unteren Teil der Graphik ist der Verlauf für das Ausbleichen **c** und Verbreitern **d** gezeigt.

tete Signaturen sind das Ausbleichen und Verbreitern einer Resonanz. Das Ausbleichen ist gleichbedeutend mit einem Verlust an Oszillatorstärke, was sich in der differentiellen Absorption als ein rein negatives Signal zeigt, wie es in (Abbildung 2.13c). Die Verbreiterung einer Resonanz erhält typischerweise die Oszillatorstärke, was sich dann im Unterschied zum Ausbleichen als ein negatives Signal mit zwei positiven Höckern zeigt (Abbildung 2.13d). Handelt es sich um eine reine Verbreiterung der Resonanz, verschwindet das Integral dieses Signals. Ist es kleiner als Null, so hat man es mit einer Überlagerung von einem Ausbleichen und einer Verbreiterung der Resonanz zu tun.

### 2.3.2 Spektroskopie mit THz Pulsen

Die Spektroskopie mit Licht im optisch sichtbaren bis zum nahinfraroten Bereich besitzt den Nachteil, dass optisch dunkle Zustände weder angeregt, noch abgefragt

werden können. Dies gilt besonders für Exzitonen, bei denen durch eine direkte optische Anregung aus Symmetriegründen nur die s-artigen Zustände angeregt werden können. Eine Möglichkeit diese Zustände doch anregen zu können, ist ein zweischrittiger Prozess, in dem zuerst mit einem optischen Photon ein Exziton erzeugt wird, welches dann ein zweites Photon absorbiert. Die für die Anregung eines Exzitons notwendige Energie liegt im Bereich von einigen meV, dies entspricht Licht mit einer Frequenz im THz-Bereich. In den letzten Jahren ist es gelungen, THz Impulse mit immer höheren Feldstärken zu erzeugen, welches die Tür in den Bereich nichtlinearer Prozesse öffnet.

### THz-Erzeugung

Die Voraussetzung um den Einfluss von THz Strahlung auf kohärente Prozesse studieren zu können ist die Verfügbarkeit von kurzen Impulsen mit fester Phasenbeziehung. Zur Erzeugung dieses kohärenten THz-Pulses bietet es sich an leicht verfügbare Femtosekundenimpulse zu nutzen. Neben den traditionellen Verfahren zur Erzeugung von kohärenter THz Strahlung, wie optische Gleichrichtung in ZnTe Kristallen, sind in den letzten Jahren mehrere alternative Erzeugungsarten vorgeschlagen worden. Die in dieser Arbeit gezeigten THz-Experimente nutzten zur Erzeugung ein Verfahren, dass auf der Erzeugung eines „optischen Schalters“ (Austin-switch [27]) beruhen. Das Ausgangsmaterial dafür ist bei tiefen Temperaturen gewachsenes GaAs (LT-GaAs)<sup>6</sup>. Dieses zeichnet sich durch kurze Lebenszeiten angeregter Ladungsträger aus. Auf die Oberfläche dieses Materials werden wie in Abbildung 2.14 gezeigt, Kontaktkämme verzahnt aufgebracht, so dass sich kleine Zwischenräume bilden.

Legt man eine Spannung zwischen den beiden Kämmen an, bildet sich ein elektrisches Feld zwischen den einzelnen Zähnen der Kämmen aus. Bei einer optischen Anregung der LT-GaAs Schicht, werden dann die erzeugten Ladungsträger in Richtung der Kontakte beschleunigt. Da die Polarität zwischen zwei benachbarten Lücken immer genau invertiert ist, muss jede zweite Lücke abgedeckt werden um eine konstruktive Interferenz der Beiträge im Fernfeld zu erreichen. Dies geschieht durch das Aufbringen einer optisch undurchlässigen Metallschicht. Um einem elektrischen Kurzschluss der Kontakte vorzubeugen, wird vorher noch eine Isolationsschicht zwischen den Elektroden und der Metallschicht aufgebracht.

---

<sup>6</sup>für low temperature GaAs, also bei niedriger Temperatur gewachsenes GaAs

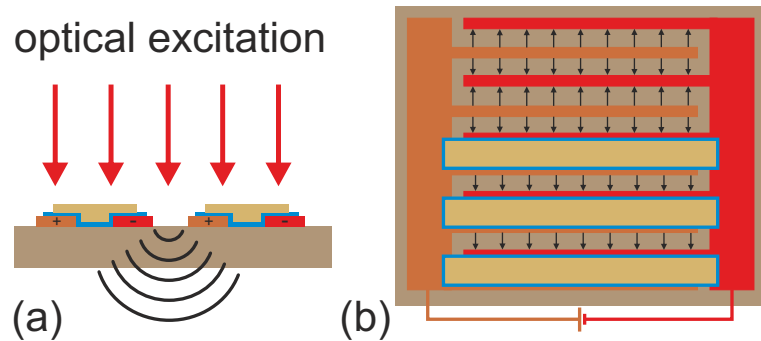


Abbildung 2.14: Aufbau einer THz Antenne im Querschnitt **a** und in Aufsicht **b**: Auf ein Stück LT-GaAs (dunkelbeige) werden verzahnte Kontakte (braun und rot) lithographisch aufgebracht. Davon wird jeder zweite zuerst mit einer elektrischen Isolationsschicht (blau) und anschließend mit einer Metallschicht (Gold) abgedeckt. So erhält man ein elektrisches Feld gleichen Vorzeichens zwischen allen verbleibenden Kontakten (Pfeile). Legt man eine Spannung zwischen den Kontakten an, kann so mithilfe eines kurzen optischen Pulses ein THz Puls generiert werden. In **b** wurde zur Anschauung bei den oberen beiden Kontakten die Isolations- und Metallschicht weggelassen. (Abdruck mit freundlicher Genehmigung des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf und der Giga-optics GmbH.)

Durch die anliegende Spannung an den Elektroden und der optisch erzeugten Ladungsträger in den nicht bedeckten GaAs Flächen, kommt es auf der ausgeleuchteten Fläche zu einem Stromfluss zwischen den Kontakten. Da alle Ströme in die gleiche Richtung zeigen, kommt es zu einer konstruktiven Interferenz der einzelnen Anteile und somit zur Abstrahlung eines elektromagnetischen Feldes. Die Schaltzeit dieses Antennenarrays hängt im Wesentlichen von der Länge der optischen Anregung, so wie der Lebensdauer der angeregten Ströme ab. Bei Anregung mit fs-Laserimpulsen kommt es so zur Abstrahlung eines THz „single-cycle“ Impulses. Bei der Benutzung eines Laserverstärkersystemes welches Impulsenergien von bis zu 1 mJ liefert, ist man in der Antenne schnell in einem Ladungsträgerdichtebereich, in dem mehr angeregte Ladungsträger durch Coulombabschirmung zu einer Reduktion der abgestrahlten THz Leistung führt. Daher wurde der optische Strahl nicht, wie bei Oszillatorsystemen üblich auf das Antennenarray fokussiert. Um eine möglichst große Fläche zu nutzen wurde der Laserstrahl daher aufgeweitet auf eine 1 cmx1 cm große kommerzielle THz Antenne<sup>7</sup> geleitet. Fokussiert konnten mit diesem THz-Strahl Feldstärken bis zu 15 kV/cm erreicht werden.

<sup>7</sup>GIGAOPTICS Tera-SED

### THz Detektion

Zur Detektion kohärenter THz Strahlung wird typischerweise die Methode der elektro-optischen Abtastung (EOS<sup>8</sup>) genutzt [28, 29]. Der THz Impuls wird mithilfe eines wesentlich kürzeren nahinfraroten Impulses abgerastert. Dabei macht man sich die Eigenschaft von speziellen Kristallen (z.B. ZnTe) zunutze, die in Anwesenheit eines elektrischen Feldes doppelbrechende Eigenschaften aufweisen. Um die Polarisation des Abfrageimpulses zu vermessen, wird die Polarisation des Strahls nach dem optisch EOS Kristall durch ein  $\lambda/4$ -Plättchen geleitet. Dieses ist gerade so gestellt, dass der linear polarisierte Strahl ohne die Anwesenheit des zu vermessenden THz Pulses zirkular polarisiert wird. Die Anwesenheit des THz-Pulses führt zu einer Drehung der Polarisationsrichtung im linear polarisierten Strahl. Dadurch kommt es nach dem  $\lambda/4$ -Plättchen zu einer elliptischen Komponente in der Polarisation des Abfragestrahles. Um die Polarisation des Abfrageimpulses zu vermessen, wird der Strahl nun mithilfe eines Wollaston-Prismas in seine linearen Bestandteile aufgeteilt, welche dann mit Photodioden detektiert werden. Bei Anwesenheit des THz Pulses führt die elliptische Komponente in der Polarisation zu einer unterschiedlichen Intensität der beiden vom Wollaston-Prisma getrennten Strahlen. Zur Verstärkung dieses kleinen zu vermessenden Signals werden die von den Photodioden erzeugten Spannungen elektronisch voneinander subtrahiert und anschließend in einem Lock-in-Verstärker (Trägerfrequenzverstärker) vermessen. Der Aufbau ist schematisch in Abbildung 2.15 gezeigt.

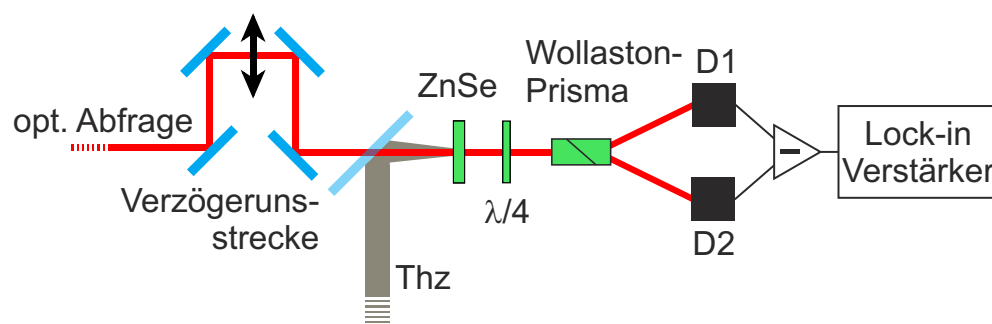


Abbildung 2.15: Versuchsaufbau zur phasensensitiven Bestimmung eines THz-Impulses mittels elektro-optischer Abtastung. Ein verzögerbarer linear polarisierter optischer fs-Laserimpuls wird zusammen mit dem zu vermessenden THz-Impuls durch einen ZnTe Kristall geleitet. Die THz induzierte Drehung der Polarisation des optischen Impulses wird im durch ein  $\lambda/4$ -Plättchen und ein Wollaston-Prisma in einen Intensitätsunterschied zweier separierter Laserstrahlen umgesetzt. Dieser kann dann mittels zwei Photodioden in einem Lock-in Verstärker gemessen werden.

<sup>8</sup>engl.: **e**lectro-**o**ptical **s**ampling

### THZ Anrege-Abfrage Spektroskopie

Neben der einfachen Bestimmung der dielektrischen Funktion einer Probe im THz-Bereich können die THz-Impulse auch als Anregeimpuls in der Anrege-Abfrage Spektroskopie benutzt werden. Damit ist es möglich, auch optisch dunkle Zustände spektroskopisch zu erschließen. Aufgrund der geringen Energie der THz-Photonen können diese jedoch im linearen Regime nicht direkt Interbandübergänge anregen. Um dennoch Informationen über beispielsweise die Exzitonendynamik zu erlangen, können die zu untersuchenden Teilchen mit einem optischen Impuls vor dem Eintreffen des THz Impulses generiert werden. Hier kann man zwischen einem Anrege-Anrege-Abfrage Experiment, sowie einem von dem THz-Feld beeinflussten kohärentem Einzelimpuls Transmissionsexperiment (SBT<sup>9</sup>) unterscheiden. Bei einem Anrege-Anrege-Abfrage Experiment erzeugt ein optischer Anregeimpuls Interbandübergänge in der Probe, die dann zusätzlich mit einem THz-Impuls gestört werden. Dieses Experiment ist besonders dafür geeignet, die Wechselwirkung des THz-Impulses mit inkohärenten Ladungsträgern zu untersuchen. Bei dem SBT Experiment dient der Abfrageimpuls selber schon als Quelle für die Interbandpolarisation. Da das System aber nicht nochmals optisch abgefragt wird, kann so nur die Wechselwirkung des THz-Impulses mit der kohärenten Interbandpolarisation vermessen werden. Der dephasierte Teil der Polarisation sowie Besetzung, können zwar mit dem THz-Photonen wechselwirken, diese haben aber keinen Beitrag zu dem transmittierten Teil des Abfrageimpulses. Die Wechselwirkung mit der kohärenten Polarisation hingegen führt zu einer direkten Änderung des transmittierten Lichtes.

### 2.3.3 PL Kanten Emissions Spektroskopie

Die Photolumineszenz (PL) einer Probe gibt Auskünfte über die Verteilung der Ladungsträger in der Probe. Mit einer spektralen Analyse kann man zudem den Übergang der Emission von spontaner Emission hin zur induzierten Emission im Laserbetrieb vermessen. Dazu gibt es verschiedene Methoden, wie beispielsweise die Strichlängenmethode[30] oder die Methode nach Hakki und Paoli[31]. Dabei liefert die Zweite eine einfache Bestimmung des modalen optischen Gewinns einer Probe durch eine Auswertung des Verhältnisses zwischen Minima und Maxima zwischen den verschiedenen Moden des Emissionsspektrums. Dafür muss die zu vermessende Probe allerdings einen Resonator besitzen. In unserem Fall wurde dieser durch das Ätzen

---

<sup>9</sup>engl.: single beam transmission

einer stufenpyramidenartigen Struktur auf der Probe erreicht. Die Reflexionen an den Probe-Luft Grenzflächen bilden dann die Spiegel für den Resonator, der sich normal zur Wachstumsrichtung ausbilden wird. Der Frequenzabstand  $\Delta f$  der Moden dieses Fabry-Perot Resonators ergibt sich mit der Länge  $L$ , sowie dem Brechungsindex  $n$  des Materials nach

$$(2.13) \quad \Delta f = c/2nL.$$

Um eine möglichst große Aufspaltung der Moden zu erreichen, sollte man also eine möglichst kleine Resonatorlänge wählen. Der experimentelle Aufbau ist schematisch in Abbildung 2.16 dargestellt.

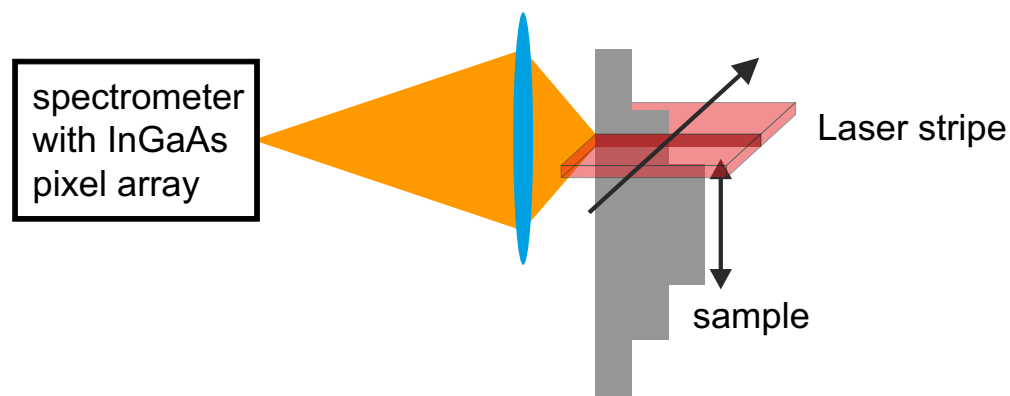


Abbildung 2.16: Schematischer Versuchsaufbau zur Bestimmung der Kantenphotolumineszenz einer Probe (Aufsicht). Auf der Probe wird lithographisch eine stufenpyramidenartige Struktur der aktiven Schicht freigestellt. Diese wird mit einem Laserstrich angeregt. Die geraden Facetten wirken als Resonator, was bei hinreichender optischer Verstärkung der Probe den Laserbetrieb ermöglicht. Das aus der Facette austretende Licht wird mit Hilfe einer Optik in ein Spektrometer mit einem InGaAs Detektor geleitet, wo es spektral aufgelöst detektiert wird. Um verschiedene Resonatorlängen realisieren zu können, kann die Höhe der Probe verändert werden.

## 2.4 Proben

### 2.4.1 Ge-Quantenfilmprobe #8009

Die Probe #8009 ist eine hochqualitative Germanium Quantenfilm Probe. Gewachsen wurde sie mit Hilfe der LEPECVD<sup>10</sup>. Auf einem (001)-orientierten Siliziumsubstrat

<sup>10</sup>aus dem engl. von **low-energy plasma-enhanced chemical vapor deposition**: etwa durch niederenergie Plasma verbesserte Gasphasenepitaxie



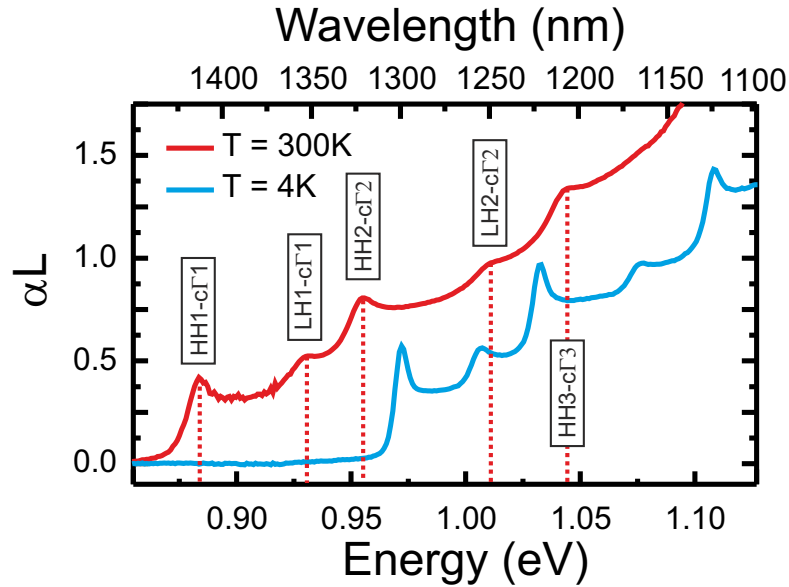


Abbildung 2.17: Lineare Absorption der Quantenfilmprobe #8009 für eine Temperatur der Probe von 4 K und 300 K. Für die 300 K Messung sind die einzelnen Resonanzen den entsprechenden Übergängen nach Ref. [32] zugeordnet.

wurde dazu zunächst eine tensil verspannte  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  Pufferschicht aufgebracht, deren Germaniumanteil  $x$  kontinuierlich von  $x = 0$  bis hin zu  $x = 0,9$  erhöht wird. Zum ausheilen von Gitterdefekten und somit einer Verbesserung der Materialqualität wird auf die Schicht mit der finalen Stöchiometrie noch eine  $2\text{ }\mu\text{m}$  dicke  $\text{Si}_{0,1}\text{Ge}_{0,9}$  Pufferschicht gewachsen. Diese Schicht bildet dann ein virtuelles Substrat für das Aufwachsen der aktiven Schicht. Diese bestehen aus 50 kompressiv verspannten, 14 nm dicken Germanium Quantenfilmen, die durch 20 nm dicke, tensil verspannte Barrieren aus  $\text{Si}_{0,15}\text{Ge}_{0,85}$  von einander getrennt sind. Die elektronische Struktur einer vergleichbaren Probe wurde bereits in einer tight-binding Rechnung untersucht [33], womit das lineare Absorptionsspektrum erklärt werden konnte [32]. Es zeigt sich, dass die Bandstrukturen der Schichten um den Quantenfilm eine Typ-I Anordnung ausbilden [32]. Das Absorptionsspektrum der Probe ist in Abbildung 2.17 für 300 K und 4 K gezeigt. Die Verspannung der Germaniumschicht bricht die Entartung der Leicht- und Schwerlochzustände, wie in Kapitel 2.2.2 bereits gezeigt wurde.

Sowohl die Wellenfunktionen der Elektronen, als auch die der Löcher haben mehrere gebundene Zustände in den Potentialtöpfen der Quantenfilmregion. Die indirekte Bankante ist in der Absorption der Probe ist kaum sichtbar, da die Übergänge vom  $\Gamma$ - zum L-Punkt Dipolverboten sind. Der Übergänge mit der niedrigsten Energie sind die von den Schwerloch- (HH) und den Leichtlochzuständen (LH) in die gebunde-

nen Leitungsbandzustände am  $\Gamma$ -Punkt ( $c\Gamma$ ). Die Leitungsbandzustände der indirekten Bandübergänge an den L-Punkten befinden sich bei 293 K 140 meV unterhalb des  $c\Gamma$  Zustandes[32]. Alle Übergänge zeigen starke exzitonische Resonanzen an den Stufenkanten in der linearen Absorption, wobei sie bei den Schwerlochübergängen wesentlich stärker ausgeprägt sind. Die gemessene Linienbreite des niederenergetischsten Überganges  $HH1c\Gamma$  beträgt bei 4 K 12 meV. Vermessungen der homogenen Linienbreite haben ergeben, dass diese Probe keinen Signifikanten Beitrag durch eine inhomogene Verbreiterung aufzeigt<sup>11</sup>. Dies wird auch durch hochauflösende Röntgenstrukturanalysen bestätigt[34].

### 2.4.2 Ge Proben #56426, #56427, #56428, #56429

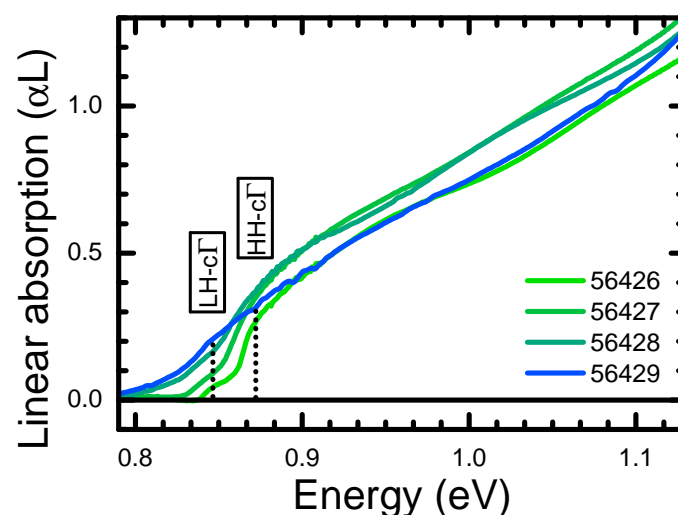


Abbildung 2.18: Lineare Absorption der Proben aus der Serie #56426 bis #56429. Die Absorption zeigt einen für ein Volumenhalbleiter typischen nahezu wurzelförmigen Verlauf. An der Bandkante sind bei den niedrig dotierten Proben der Leicht- und Schwerlochübergang getrennt von einander erkennbar. Mit steigender Dotierung kommt es zu einer immer weiteren Verbreiterung der Bandkante, so dass die Leicht- und Schwerlochbänder nicht mehr unterschieden werden können.

Bei der Proben #56426 bis #56429 handelt es sich um eine Serie mit n-dotierten, verspannten Germanium Volumenmaterial. Die  $1\mu\text{m}$  dicken Germaniumschichten wurden bei 773 K direkt auf das Silizium Substrat aufgebracht. Dabei wurde für die unterschiedlichen Proben die Konzentration der Dotieratome variiert. Aufgrund der dicken Schicht wächst das Germanium nicht pseudomorph auf dem Substrat auf. Bei dem Abkühlen der Probe nach dem Wachstum ergibt sich dann eine tensile Verspannung

<sup>11</sup>Veröffentlichung in Vorbereitung

Probe	$N_D$ (cm <sup>-3</sup> )	$\epsilon_{  }$
#56426	$1,0 \cdot 10^{17}$	0,10%
#56427	$1,0 \cdot 10^{18}$	0,02%
#56428	$2,4 \cdot 10^{18}$	0,04%
#56429	$2,5 \cdot 10^{19}$	0,04%

Tabelle 2.1: Konzentration der Dotieratome  $N_D$  und die Verspannung der Germaniumschicht in der Schichtebene  $\epsilon_{||}$  für die Probenserie #56426,...,#56429.  $N_D$  wurde in einer 4-Punkt Methode in Van der Pauw Geometrie vermessen [35, 36].  $\epsilon_{||}$  ist mithilfe einer Röntgenstrukturanalyse unter Berücksichtigung des (004) und des (224) Reflexes bestimmt worden [24]. (Messung und Auswertung von Daniel Chrastina)

der Probe, wodurch der Leichtlochübergang zu dem niederenergetischsten direkten Übergang wird [23] (vergl. Kapitel 2.2.2). Die genaue Verspannung der Proben in der Schichtebene, sowie die gemessenen Dotieratomdichten sind in Tabelle 2.1 gezeigt. Abbildung 2.18 zeigt die lineare Absorption der Probenserie bei einer Probentemperatur von 7 K. Für die Proben mit niedriger Dotierung ist klar der in Kapitel 2.2.2 gezeigte Verlauf zu erkennen: Der niederenergetischste Übergang ist durch den Leichtlochübergang gegeben, während der Schwerlochübergang knapp 25 meV darüber liegt. Mit steigender Dotierung wird die Bandkante immer mehr verbreitert, so dass bei der Probe #56429 die beiden Übergänge nicht mehr von einander unterschieden werden können.

### 2.4.3 Ge Probe #56456

Die Probe #56456 gleicht von der Struktur her der #56426 - #56429 Serie. Der einzige Unterschied liegt darin, dass es sich hier um eine p-Dotierung handelt. Die Konzentration der Dotieratome beträgt dabei  $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Abbildung 2.19 zeigt die lineare Absorption der Probe. Es fällt auf, dass die Absorption unterhalb der Bandkante nicht verschwindet, was durch die freie Ladungsträgerabsorption der Dotieratome zustande kommt.

### 2.4.4 (GaIn)As-Quantenfilmprobe #DBR13

Die Probe #DBR13 besteht aus 30 (Ga<sub>0,97</sub>In<sub>0,03</sub>)As Quantenfilmen, die durch GaAs Barrieren voneinander getrennt sind. Die Qualität der Probe ist sehr gut, was sich besonders in der extrem schmalen Linienbreite der exzitonischen Resonanzen zeigt.

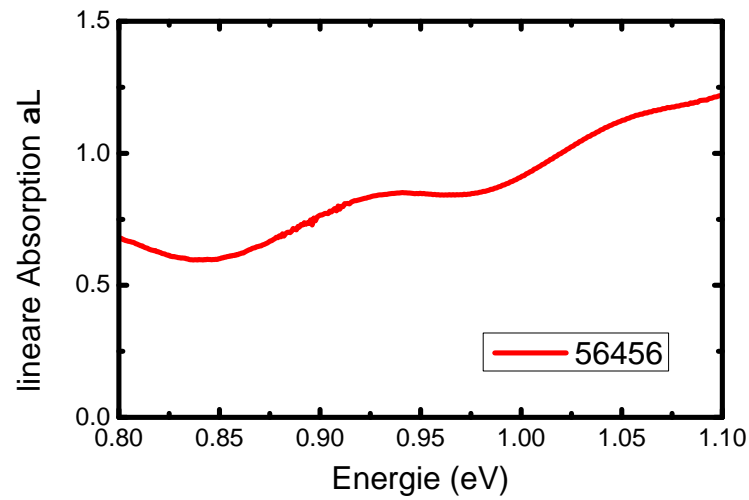


Abbildung 2.19: Lineare Absorption der Probe #56456. Aufgrund der Anwesenheit der Dotieratome zeigt die lineare Absorption der Probe auch unterhalb der Bandkante des Material eine hohe Absorption.

Die 1s und 2s Exzitonzustände des Schwerlochüberganges sind 6 meV von einander getrennt. Weitere 6 meV oberhalb der 2s Exzitonlinie befindet sich die Resonanz des abgespaltenen 1s Leichtlohexzitons. Zwischen diesen beiden Resonanzen ist zusätzlich noch ein verbotener Übergang zu erkennen. Durch das Substrat kommt es zu einem Absorptionshintergrund, der zu höheren Energien hin zunimmt. Die lineare Absorption der Probe ist in Abbildung 2.20 zu sehen.

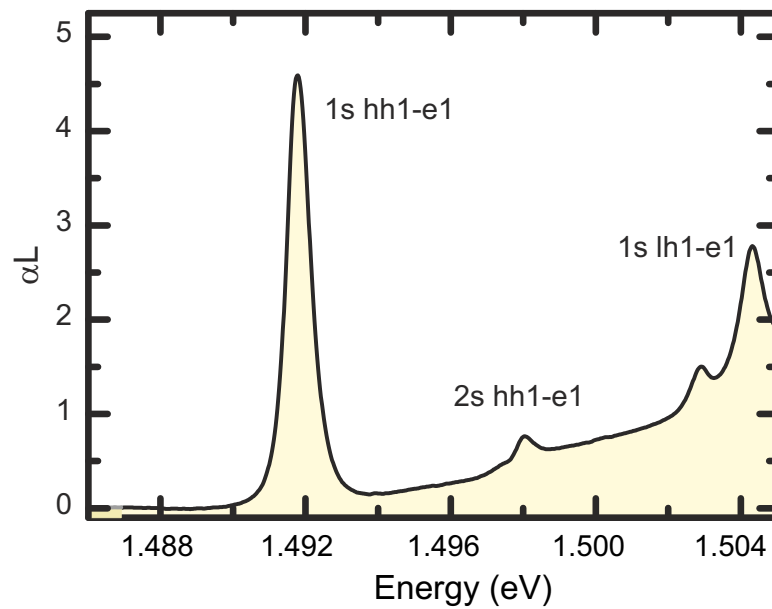


Abbildung 2.20: Lineare Absorption der  $(\text{Ga}_{0.97}\text{In}_{0.03})\text{As}$  Quantenfilmprobe #DBR13. Aufgrund der guten Qualität der Probe sind die einzelnen exzitonen Resonanzen getrennt voneinander beobachtbar.



## 3 Kohärente Dynamik

Wie bereits in dem Grundlagenkapitel 2.1.2 gezeigt, gliedert sich die Dynamik nach einer optischen Anregung in unterschiedliche Zeitregimes. In diesem Kapitel sollen die kohärenten Effekte betrachtet werden, die während und wenige hundert fs nach der Ankunft eines optischen Pulses stattfinden.

Im ersten Teil wird zunächst der intraexzitonische Autler Townes Effekt betrachtet. Anschließend wird der dynamische Stark Effekt, sowie Aufspaltungen von Exzitonresonanzen bei einer Anregung der Interbandübergänge im Fokus stehen. Teile der gezeigten Messungen wurden in Zusammenarbeit mit Kolja Kolata, Ronja Wolschski und Benjamin Ewers durchgeführt. Zudem wurden einige Abschnitte bereits veröffentlicht [37] oder werden zur Veröffentlichung vorbereitet.

### 3.1 Exzitonischer Autler-Townes Effekt

Die Grundlagen kohärenter Wechselwirkungsprozesse von Licht mit Materie, wurden schon in den 1930er Jahren durch Betrachtungen optisch angeregter atomarer Systeme gewonnen [38]. Atomare Systeme bieten sich dabei besonders an, da die fundamentalen energetischen Niveaus sehr lange Kohärenzzeiten aufweisen, was die Beobachtung der kohärenten Dynamik begünstigt. Einer der prominentesten Effekte ist dabei die Rabi-Oszillation. Wird ein Material mit zwei um  $\hbar\omega_1$  versetzte Energie Niveaus  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  resonant zu diesem Übergang optisch angeregt, kann es zu einem zyklisch vollständigen Anregen und Relaxieren dieses Zwei-Niveausystems kommen, eben zu jenen Rabi-Oszillationen. Die Voraussetzung dafür ist eine hinreichend große Rabi-Energie  $\hbar\omega_R$ , des angeregten Systems, verglichen mit der Linienbreite des Überganges. Die Feldamplitude des anregenden Lichtes geht dabei quadratisch in  $\omega_R$  ein, außerdem ist die Größe proportional zum Dipolmatrixelement  $d_{cv}$  des Überganges (vergl. Formel 2.3). Rabioszillationen zeigen sich im Absorptionsspektrum des Überganges als eine Aufspaltung der beiden Zustände  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$ , wie in Abbildung 3.1

gezeigt. Dies führt zu der Ausbildung eines so genannten Mollow-Triplets: Neben einer Absorption bei der Energie des ungestörten Überganges erscheinen noch zwei Seitenbanden bei  $\omega_1 \pm \omega_R$  [39]. Anschaulich, kann man dies als ein Frequenzmischen von  $\omega_1$  mit  $\omega_R$  sehen. Werden die so optisch gekoppelten Zustände von einem weiteren Zustand  $|0\rangle$  aus abgefragt, zeigt sich nicht mehr das vorher diskutierte Mollow-Triplet, sondern es kommt zu einer Aufspaltung der zentralen Absorptionslinie  $\omega_2$  um  $\omega_R$  [40]. Diese Manifestation der Rabi-Oszillationen wird Autler-Townes-Effekt genannt.

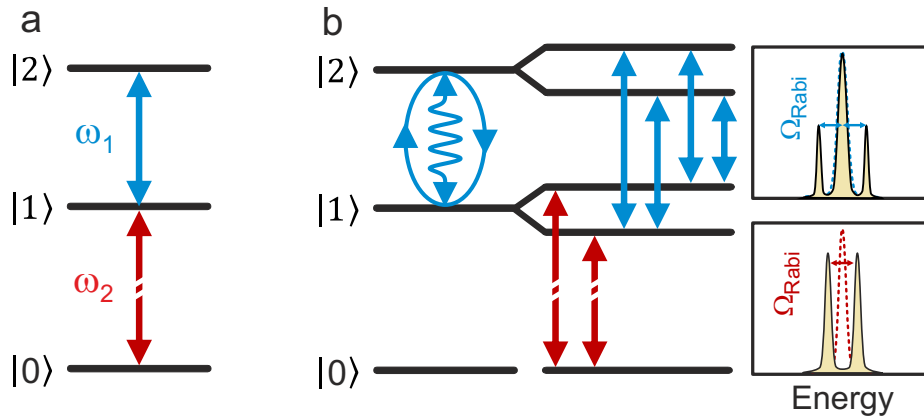


Abbildung 3.1: **a** Darstellung eines Dreineiveausystems mit den Zuständen  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  mit den Übergangsenergien  $\omega_2$  und  $\omega_1$ . **b** Wird ein solches System resonant zum  $|1\rangle - |2\rangle$  Übergang optisch angeregt, kommt es zu der Ausbildung einer Aufspaltung zwischen den beiden Zuständen um  $\omega_R$ . Für den  $|1\rangle - |2\rangle$  Übergang wird dann die Ausbildung eines Mollow Triplets beobachtet, während sich bei dem  $|0\rangle - |1\rangle$  Übergang eine Spaltung der Resonanz zeigt. Diese wird Rabi Aufspaltung oder Autler-Townes Effekt genannt.

In kristallinen Festkörpern ist die Realisierung solcher kohärenten Effekte deutlich schwieriger. Dies liegt vornehmlich an dem Übergang von diskreten Energieniveaus zur Ausbildung von Bändern und der damit verbundenen Vielteilchennatur der einzelnen Zustände. Einzelne Ladungsträger sind so nicht mehr ungestört, sondern über eine Vielzahl an Wechselwirkungskanälen mit den anderen Ladungsträgern im System, sowie mit den Gitteratomen verbunden. Diese Streukanäle führen zu kurzen Kohärenzzeiten der angeregten Ladungsträger. Als guter Kandidat zur Ausbildung einer kohärenten Dynamik bieten sich die dem Wasserstoffatom ähnlichen Exzitonzustände an. Jedoch sind auch hier nur Kohärenzzeiten im Bereich von hundertten von fs in Germanium bis hin zu einigen ps in GaAs gegeben. Auch in der Vergangenheit gab es immer wieder Experimente, die das Verständnis der kohärenten optischen Effekte bei resonanter Anregung von Exzitonen<sup>1</sup> vertieft haben. Neben dem in Kapitel 3.2 vorgestellten dynamischen Stark Effekt [41] und der optische

<sup>1</sup>Also die direkte optische Erzeugung eines gebundenen Elektronen-Loch Paares.



Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion [42] wurden auch direkten Vermessungen der Rabi-Oszillationen [43–45] und weiterer kohärenter Effekte wie beispielsweise in Vierwellenmisch-Experimenten [46, 47].

#### 3.1.1 Spektroskopie an Exzitonen

Exzitonische Systeme unterscheiden sich in Ihren fundamentalen Eigenschaften von denen atomarer Gase. Der Grundzustand des exzitonischen Systems ist der Vakuumszustand  $|vac\rangle$ . Die Relaxation des Exzitons in den Grundzustand führt also zu einer Rekombination der beiden beteiligten Ladungsträger. Durch eine direkte optische Anregung kann dieser Zustand aufgrund der Symmetrie der Wellenfunktionen<sup>2</sup> nur s-artige exzitonische Zustände realisieren. Eine optische Anregung erzeugt zunächst immer eine kohärente Polarisierung in dem Material, welche dann durch Streuprozesse in eine inkohärente exzitonische Besetzung übergehen kann [11]. Die optischen Auswahlregeln für den Dipolübergang erlauben nur Übergänge der Exzitonen mit einer Änderung der Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $J$  um  $\pm 1$ . Damit sind, von dem durch die initiale optische Anregung erzeugten  $1s$  Zustand, Übergänge in die  $p$  Zustände ( $2p, 3p, \dots$ ) möglich. Die Energie dieser Übergänge liegt in dem Bereich, der optisch mit THz Strahlung erreichbar ist. Ein weiterer großer Unterschied ist durch die Vielteilchennatur der Exzitonwellenfunktionen gegeben, welche die Exzitonen stärker aneinander koppelt als es bei den Atomen eines atomaren Gases der Fall ist.

Experimentell muss zunächst mit einem optischen Impuls eine kohärente Polarisierung im Material erzeugt werden. Diese kann anschließend mit einem THz Impuls zu Übergängen in höhere exzitonische Niveaus angeregt werden. Abbildung 3.2 zeigt den schematischen Aufbau eines solchen Experimentes. Gemessen wird dabei die spektral aufgelöste Transmission durch die Probe. Die in diesem Kapitel vorgestellten Experimente wurden zusammen mit Benjamin Ewers und Ronja Woscholski durchgeführt. Die gezeigten theoretischen Berechnungen wurden von Andrea Klettke aus der Arbeitsgruppe von Prof. Koch und Prof. Kira auf Grundlage von Halbleiterblochgleichungen angefertigt.

---

<sup>2</sup>Die gesamte Symmetrie der Wellenfunktionen ist durch die Symmetrie der Bänder, aus denen sich die Exzitonen bilden, sowie der Symmetrie der exzitonischen Zustände gegeben.

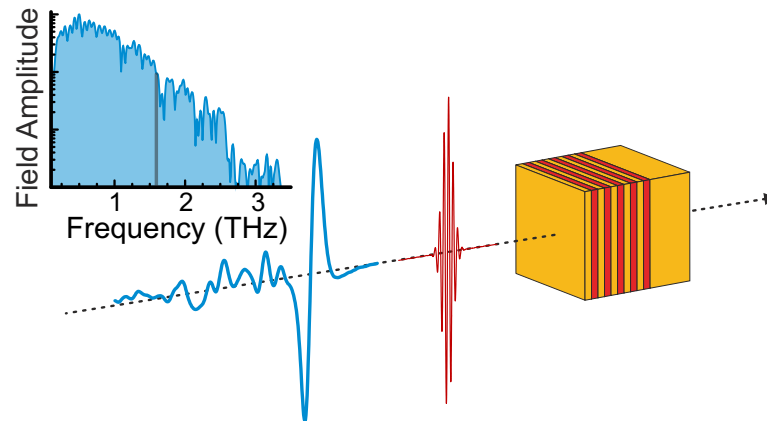


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau des Experimentes zur Vermessung interexzitonischer Übergänge. Zunächst wird mit einem optischen Impuls (rot) eine kohärente Polarisation in der Probe erzeugt, die dann mit einem THz Impuls (blau) gestört wird. Der transmittierte optische Impuls kann anschließend spektral analysiert werden. Der THz Impuls entspricht dem im Experiment verwendeten. In dem Graphen oben links ist die spektrale Zusammensetzung des Impulses gezeigt. Der graue Balken zeigt dabei die Energie des exzitonischen 1s-2p Übergangs in (GaIn)As an.

#### 3.1.2 Autler-Townes Effekt in (GaIn)As

Die Wechselwirkung des THz Impulses mit der kohärenten Polarisation führt zu einer Kopplung des 1s mit dem 2p Zustand, was bei einer hinreichenden Stärke des treibenden elektrischen Feldes zu einer Rabi-Oszillation der Polarisation und damit zu einem Aufspalten der beiden Zustände führen sollte. Dies würde sich in der Transmission des optischen Impulses als eine Aufspaltung der exzitonischen Resonanz, also durch den Autler-Townes Effekt, zeigen. Im GaAs Materialsystem wurden in der Vergangenheit schon Hinweise auf interexzitonische Rabi-Oszillationen gesammelt [12, 14, 48, 49], diese waren jedoch nicht so stark ausgeprägt, dass die Ausbildung einer Aufspaltung beobachtet werden konnte.

In diesem Experiment konnte, wie Abbildung 3.3 zeigt, die Ausbildung eines intraexzitonischen Autler-Townes Effekt beobachtet werden. Mit dem Ansteigen der Intensität des eingestrahlten THz-Feldes, kommt es zunächst zu einem Ausbleichen und einer Rotverschiebung der exzitonischen 1s Resonanz. Die Rotverschiebung hat ihren Ursprung in dem dynamischen Stark Effekt [13, 50]. Mit weiter steigender Intensität bildet sich dann eine Schulter aus, die anschließend zu einer Spaltung der Exzitonresonanz führt. Dieses Verhalten wurde inzwischen auch in Ref. [51] beschrieben und passt zunächst gut zu der Beschreibung des Effektes als Rabi Oszillation der Polari-

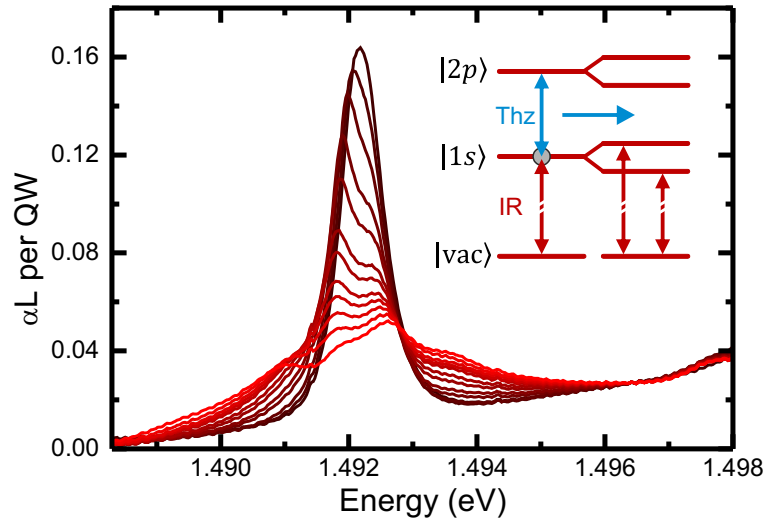


Abbildung 3.3: Abhängigkeit der Absorption um die 1s-Exzitonresonanz von der Intensität des THz Impulses. Die THz Feldstärke betrug: 0 (schwarz), 3,5, 4,5, 5,5, 6, 7, 7,5, 8,5, 9, 10, 11,5, 15 kV/cm (rot). Der Zeitversatz zwischen dem optischen- und dem THz Impuls wurde auf die maximale Aufspaltung optimiert. Der Inset oben rechts zeigt schematisch die THz induzierte Aufspaltung des  $|1s\rangle$ , sowie des  $|2p\rangle$  Zustandes. Dies führt im optischen Spektrum zu der Aufspaltung des  $|vac\rangle - |1s\rangle$  Überganges.

sation zwischen dem 1s und dem 2p Zustand. Bei hohen Feldern erscheinen neben der gespaltenen Resonanz noch zwei weitere Maxima, welche sich aus den Schultern der Resonanz ausbilden. Eine einfache Zweiniveausystem Betrachtung liefert keine Antwort auf den Ursprung dieser zusätzlichen Flanken, daher ist eine Diskussion der Ergebnisse auf dem Hintergrund einer mikroskopischen Theorie notwendig.

Betrachtet man die spektrale Positionen der beiden Maxima der gespaltenen Resonanz in Abhängigkeit der Intensität des treibenden THz Feldes, so kann man das Verhalten phänomenologisch in drei Bereiche gliedern, wie in Abbildung 3.4 gezeigt. Bei niedrigen Intensitäten befindet sich das System im quasi linearen Bereich, die exzitonische Resonanz zeigt nur ein geringes Ausbleichen, sowie eine leichte Rotverschiebung. Ab einem Feld von etwa 1 kV/cm kommt es zu einer schnellen Vergrößerung der Rotverschiebung, sowie zur Ausbildung der Rabi Aufspaltung. Dabei steigt die energetische Separation der beiden Resonanzen linear mit dem elektrischen Feld. Dies entspricht der Erwartung eines Zweiniveausystems, welches eine Aufspaltung um die Rabienergie  $\hbar\omega_R$  voraus sagt, wobei diese proportional zum treibenden elektrischen Feld ist  $\omega_R \propto \mathcal{E}$ . Ab einer THz Feldstärke von 2,9 kV/cm bleibt die Aufspaltung jedoch konstant, unter einer Verschiebung der beiden Resonanzen zu höheren Energien. Die Abhängigkeit der Rabi-Aufspaltung von dem Zeitversatz zwischen dem optischen und dem THz Impuls ist in Abbildung 3.5 gezeigt. Die Maximale Aufspaltung ist bei einer

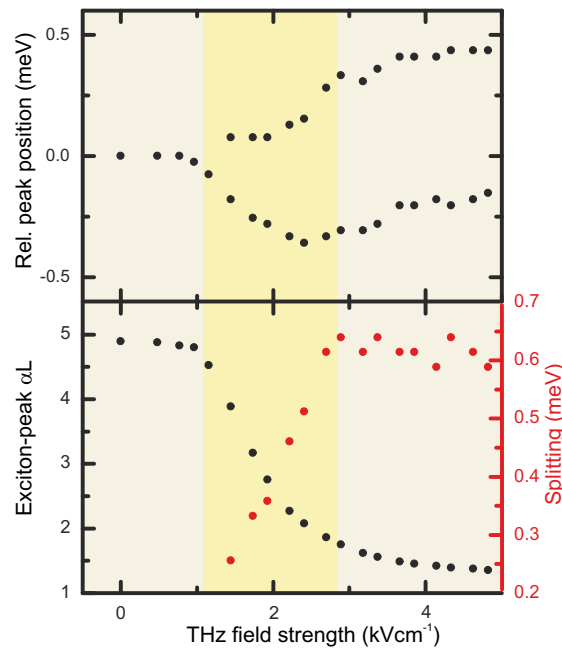


Abbildung 3.4: Der obere Teil der Graphik zeigt die relative Lage der Resonanzen in Abhängigkeit der THz Feldstärke. Der untere Teil zeigt die dazu gehörige Absorption der Exzitonresonanz sowie die Größe der Rabi Aufspaltung.

optimalen Überlagerung der beiden Impulse zu beobachten. Die Dephasierungszeit der kohärenten Polarisation liegt auch bei der Anwesenheit des THz Feldes bei ca. 0,7 ps. Dies führt dazu, dass kein Einfluss von dem Nulldurchgang des elektrischen Feldes des THz Impulses auf die Aufspaltung, oder das Ausbleichen der Resonanz zu erkennen ist, wie der rechten Teil von Abbildung 3.5 zeigt. Die angeregten Spektren in Abbildung 3.5 zeigen eine oszillatorische Signatur im Kontinuum der exzitonischen Zustände. Deren Ursache liegt in der Wechselwirkung der höheren harmonischen Schwingungen<sup>3</sup> des elektrischen Feldes mit der Probe [52]. Die Form dieser Oszillationen wird hauptsächlich von dem Zusammenspiel des  $jA$ - und des  $A_{THZ}^2$ -Termes in der Gleichung für die Zeitentwicklung von  $P_k$  bestimmt (vergl. Gleichung 2.7) [13]. Dabei heben sich die beiden Terme gegenseitig fast auf und erzeugen dabei das beobachtete oszillative Verhalten. Die zeitliche Lage der Minima und Maxima hängt von der genauen Form des THz Impulses ab und verschiebt sich selbst bei einer Änderung der CEP<sup>4</sup> des Impulses. Für richtige Beschreibung der Theorie ist es jedoch wichtig, keine rotierende Wellennäherung anzuwenden, da diese Näherung wie oben geschildert stark von der genauen Form des THz Impulses abhängt und somit hier zu keiner Übereinstimmung mit dem Experiment führt.

<sup>3</sup>Dies ist gleichbedeutend mit dem Auftreten von Prozessen, an denen mehr als ein Photon beteiligt ist.

<sup>4</sup>von carrier envelope offset phase; etwa: Phase der Trägerfrequenz in der Einhüllenden

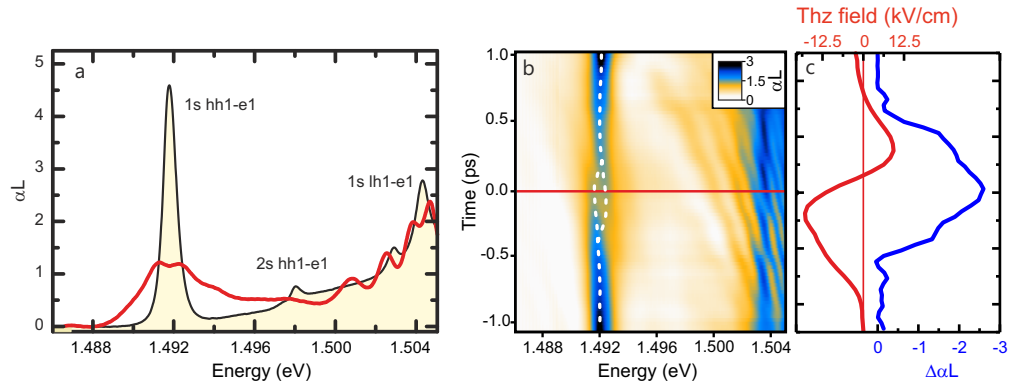


Abbildung 3.5: **a** Der Graph zeigt das lineare Absorptionsspektrum der Probe DBR13 (schwarze Linie), sowie die Absorption bei Anwesenheit eines THz Impulses mit 12,5 kV/cm. Das angeregte Spektrum zeigt das Verhalten der Probe für den Fall des gleichzeitigen Auftreffens von optischen und THz Impuls in der Probe. Teil **b** zeigt die spektral aufgelöste Absorption der Probe bei verschiedenen zeitlichen Versätzen zwischen dem optische und dem THz Impuls als 2D Falschfarbengraph. Die rote Linie zeigt das in **a** gezeigte Spektrum für den angeregten Fall. Die weiß gestrichelte Linie deuten den Verlauf des Maximums (bzw. der Maxima) der 1s Resonanz an. **c** zeigt die differenzielle Absorption  $\Delta\alpha L$  der 1s Resonanz sowie die THz Feldstärke zu den einzelnen Zeiten.

Um die Dynamik der Polarisation durch die Wechselwirkung mit den THz Impulsen besser verstehen zu können, wurde die in Abb. 3.5 gezeigte Messung theoretisch modelliert. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abbildung 3.6 dargestellt. Neben der vollen mikroskopischen Vielteilchentheorie auf Grundlage der Halbleiter-Bloch-Gleichungen wurde das System zusätzlich noch in Zweiniveausystemnäherung betrachtet. Die Rechnung für das Zweiniveausystem unterscheidet sich nur in der Zahl der betrachteten Zustände, d.h. die Übergänge in die höheren exzitonsichen Zustände sind künstlich verboten. Die grundlegenden Parameter der Rechnungen unterscheiden sich ansonsten nicht.

Die Rechnungen liefern einen tiefen Einblick in die Dynamik, die von dem THz Impuls in der Probe angestoßen wird. Betrachtet man die oberste Zeile in Abbildung 3.6 so sieht man in (a) das auf den ersten Blick beide Rechnungen die in Abbildung 3.3 gezeigte Aufspaltung der Resonanz beobachten. Dabei zeigt die volle Rechnung (durchgezogene Linie) auch die im Experiment beobachtete nicht symmetrische Spaltung der Resonanz. Betrachtet man jedoch die Dynamik der Polarisation in (b) fällt der eklatante Unterschied zwischen den beiden Rechnungen auf. Das Zweiniveausystem zeigt wie erwartet eine mehrzyklische Rabi-Oszillation zwischen dem 1s und dem 2p Zustand. In der vollen Rechnung ist zunächst eine Konversion der 1s Polarisation in den 2p Zustand zu beobachten. Auch zeigt der 1s Zustand ein Minimum nach 0,5 fs, so dass in einem gewissen Maße eine partielle Rabi-Oszillation stattfindet.

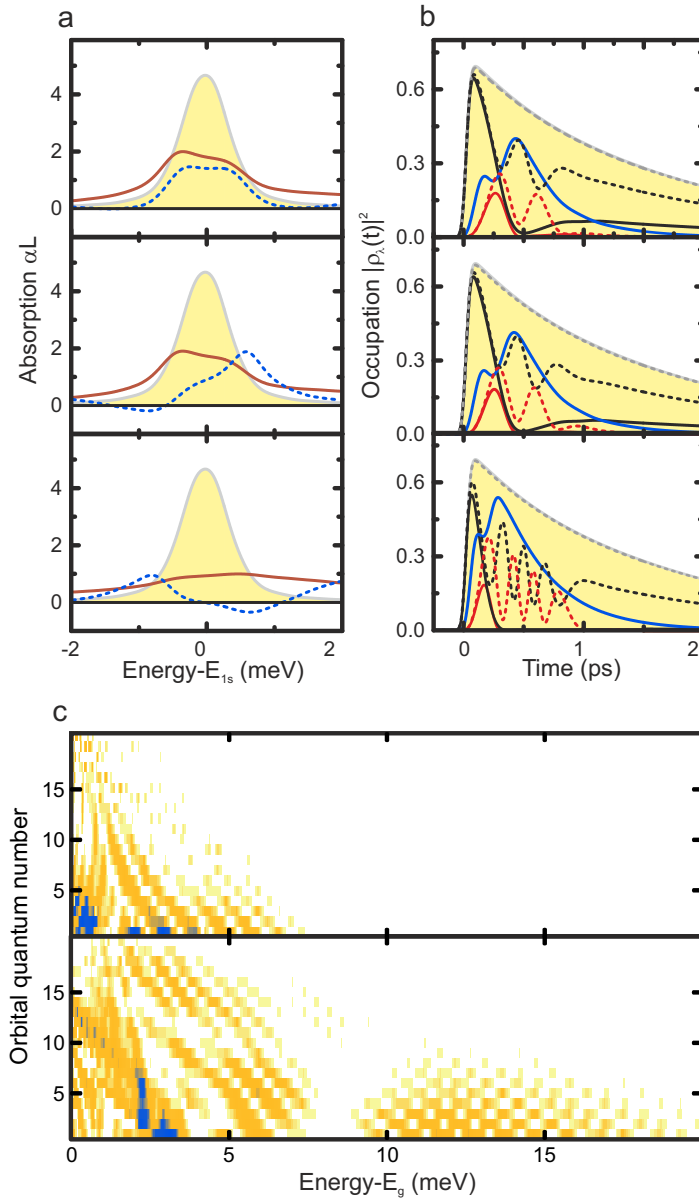


Abbildung 3.6: Ergebnis der mikroskopischen Theorie für THz Feldstärken von 4,8 kV/cm (oben), 5,1 kV/cm (mitte) und 9,6 kV/cm (unten). **a** Absorptionsspektren  $\alpha_L$  für die volle mikroskopische Rechnung (rot), für eine Zweiniveausystemnäherung (gepunktet), sowie für die ungestörte Probe (gelbe Fläche) als Referenz. **b** Zeitliche Dynamik des Betrages der Polarisation. Die gelbe Fläche zeigt das Verhalten ohne THz Puls. Die durchgezogenen Linien zeigen wieder die Ergebnisse der vollen Rechnung, die gepunktete die der Zweiniveausystemnäherung. Die Kurven zeigen den Verlauf der Polarisation für den 1s Zustand (schwarz), den 2p Zustand (rot) sowie im Falle der vollen Rechnung für die restlichen Zustände (blau). **c** Ergebnis der mikroskopischen Theorie für die relative Besetzungswahrscheinlichkeit der Polarisation nach der Wechselwirkung mit dem THz Impuls ( $t=1,5$  ps) in Abhängigkeit von dem Energieüberschuss zur Energie der Bandkante und der Drehimpulsquantenzahl der Zustände als 2D Falschfarbendarstellung. Die dabei zeigt der Farbverlauf von weiß über orange zu blau eine steigende Wahrscheinlichkeit für die Besetzung der Zustände. Da der Graph bei 5,1 kV/cm sich nur unwesentlich von dem bei 4,8 kV/cm (oben) unterscheidet, wurde er hier ausgelassen.

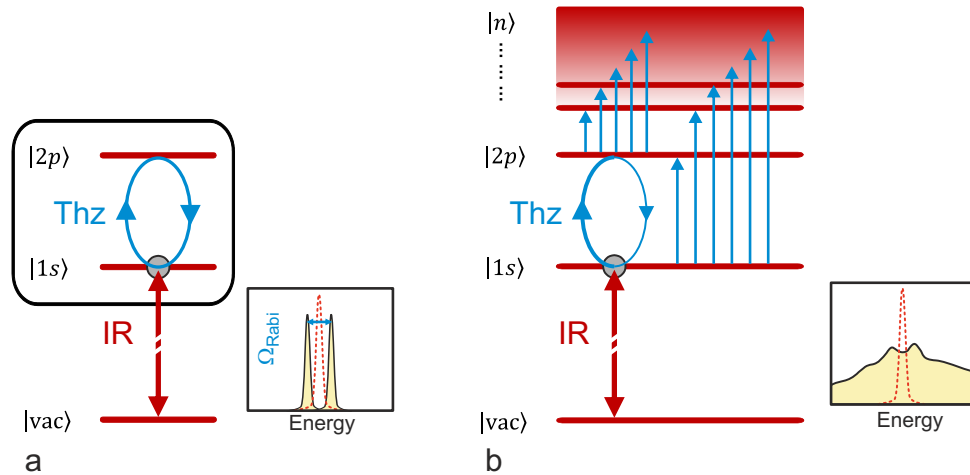


Abbildung 3.7: **a** Schematische Darstellung eines "geschlossenen" 1s-2p Überganges. Die Einwirkung des THz Impulses führt zu Rabi Oszillationen zwischen den beiden Zuständen, das im transmittierten optischen Licht (IR) zu der Ausbildung des Autler-Townes Effektes führt. **b** Auch für das nicht geschlossene System wird die Ausbildung der Aufspaltung beobachtet. Zusätzlich kommt es jedoch durch die massive Anregung höherer Zustände zu der Verbreiterung der Resonanz, sowie zur Ausbildung der Seitenband-artigen Maxima.

Der Großteil der Polarisation wird jedoch schon kurz nach der Erzeugung in höhere Zustände konvertiert. Dies ist deutlich in Teil (c) der Abbildung gezeigt. Die 2D Falschfarbendarstellung zeigt die Besetzungswahrscheinlichkeit der Polarisation in Abhängigkeit der Drehimpulsquantenzahl der betreffenden Zustände, sowie dem Energieüberschuss zur Bandkante, die durch den Beginn der Kontinuumszustände gegeben ist. Der Großteil der Polarisation befindet sich im Bereich von 0-3 meV oberhalb der Bandkante und weist Drehimpulsquantenzahlen von 0-5 auf. Dies weist auf eine sehr effiziente Mehrphotonenanregung der Exzitonen durch das THz Feld hin. Das Zweiniveausystem auf der anderen Seite zeigt natürlicherweise nur eine Besetzung des 1s, sowie des 2p Zustandes. Trotz des auf den ersten Blick qualitativ und quantitativ gut wiedergegebenen Transmissionsspektrums, sind die von dem Modell vorhergesagten physikalischen Zusammenhänge fundamental falsch. Dies ist in sofern von gravierender Bedeutung, als auch aktuelle Veröffentlichungen sich meist auf reine Zweiniveausystembetachtungen beschränken [51]. Dass die gute Übereinstimmung bloß zufällig durch eine geschickte Wahl der Parameter, welche die in die Zweiniveausystemrechnung einfließen entsteht, zeigt die Rechnung zu der zweiten Anregungsdichte in der Mitte der Abbildung. Diese betrachtet die gleiche Situation für eine leicht erhöhte THz Felstärke von 5.1 kV/cm. Während die volle Rechnung erwartungsgemäß nur marginale Änderungen zeigt, wird von der Zweiniveausystem Rechnung plötzlich eine optische Verstärkung vorhergesagt. Dieses entspricht jedoch

offensichtlich nicht dem tatsächlich beobachteten Verhalten. Die unterste Zeile der Abbildung zeigt das Ergebnis bei einer THz Feldstärke von 9.6 kV/cm. In der vollen Rechnung ist ein starkes Ausbleichen, sowie eine Verbreiterung der Resonanz zu erkennen. Diese ist in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Auch die Seitenbanden-artigen Maxima auf den Flanken der gespaltenen Resonanz werden wiedergegeben, allerdings lässt sich für diese Resonanzen keine einfache grundlegende Bedeutung finden, wie es bei der Rabi-Aufspaltung der Fall ist. Bei der Auswertung der Besetzungswahrscheinlichkeiten der Polarisierung nach der Einwirkung des THz Impulses zeigen sich bei den starken Feldern Besetzungen bis über 15 meV oberhalb des exzitonischen Kontinuums. Dabei nimmt die Polarisierung Zustände mit einer Drehimpulsquantenzahl von bis zu 20 ein. Bei der starken Anregung treten also vermehrt Prozesse mit mehreren THz Photonen, sowie sequenzielle Mehrfachanregungen auf.

Zusammenfassend kann man also feststellen, dass der exzitonische 1s-2p Übergang bei einer Anregung durch THz Impulse nur in sehr engen Grenzen als ein geschlossenes Zweiniveausystem, wie in Abbildung 3.7a dargestellt, betrachtet werden kann. Durch den Vergleich konnte ein Versagen der Näherung schon bei Feldstärken gezeigt werden, bei denen die aus dem Zweiniveausystem bestimmte Linienform in der Absorption noch gut mit den experimentellen Daten übereinstimmt. Der Grund dafür liegt, wie in Abbildung 3.7b gezeigt, in der Mehrfachabsorption, sowie in direkten Vielphotonenprozessen begründet. Diese führen dazu, dass die im Zweiniveausystem geschlossene Rabi Oszillation im vollen System keinen geschlossenen Kreislauf mehr bildet.

#### 3.1.3 Autler-Townes Effekt in Germanium

Nachdem im vorherigen Kapitel die Wechselwirkung von Exzitonen in (GaIn)As Quantenfilmen mit starker THz-Strahlung behandelt wurde, soll hier das Verhalten von Germanium Quantenfilmen unter diesen Anregungsbedingungen betrachtet werden. Germanium hat für die Messung der Rabi Aufspaltung, verglichen mit (GaIn)As, keine optimalen Eigenschaften. Durch die effiziente Interbandstreuung der Elektronen in die L-Täler ist die  $T_2$  Zeit in Germanium im Bereich von wenigen hundert fs, was die Wechselwirkungszeit zwischen dem THz Feld und der kohärenten Polarisierung beschränkt. Außerdem führt die kurze Kohärenzzeit zu einer großen homogenen Verbreiterung der Resonanzen im Vergleich zur Exzitonienbindungsenergie im Material.



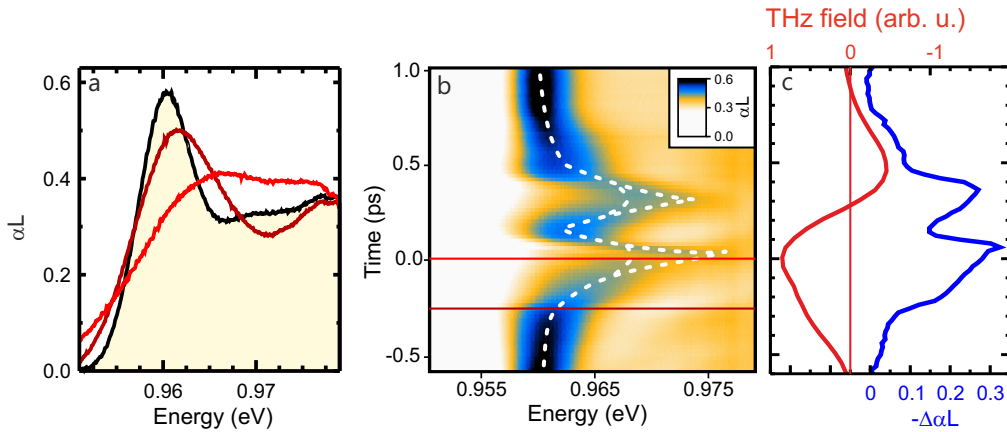


Abbildung 3.8: THz induzierte Spaltung der exzitonischen Resonanz in Germanium (vergl. mit Abb. 3.5) bei einer THz Feldstärke von 13,5 kV/cm. **a** Zeigt die Absorption der Probe ohne THz (schwarze Kurve), sowie für einen Zeitversatz von -250 fs (dunkel rote Kurve) und 0 fs (hell rote Kurve) zwischen dem optischen und dem THz Impuls. **b** Absorption der Probe in Abhängigkeit des Zeitversatzes, sowie der Energie als Falschfarbendarstellung. Die roten Linien zeigen den Zeitversatz bei der in **a** gezeigten Spektren. Die weiß gepunkteten Kurven verdeutlichen den Verlauf des Maximums/der Maxima der Absorption. **c** Zeitliche Form des THz Impulses, sowie der Absorption an der Stelle der Exzitonresonanz.

Daher fallen alle exzitonischen Übergänge in eine Linie, was zusammen mit der Verbreiterung an sich, die Beobachtung des Effektes erschwert. Trotz dieser schlechten Voraussetzungen gelang es, wie Abbildung 3.8 zeigt, eine THz induzierte Spaltung der exzitonischen Resonanz herbeizuführen. Im Vergleich zu der entsprechenden Messung an der (GaIn)As Probe aus Abbildung 3.5 fällt zunächst die zeitliche Aufteilung des Signal in zwei Bereiche auf. Während das  $\Delta\alpha L$  Signal in Abbildung 3.5(c) ein Maximum bei einem optimalen zeitlichen Überlapp zwischen optischen und THz Impuls zeigt, wird in Germanium ein Einbruch des Signals bei dem Nulldurchgang des elektrischen Feldes beobachtet. Dieser Verlauf ist in der kurzen Dephasierungszeit der kohärenten Polarisation in Germanium begründet, welche effektiv zu einer geringeren Zeitmittlung führt[37]. Ein solches Verhalten ist auch von ZnSe Quantenfilmen bekannt, welche durch ihre Dephasierungszeit von  $\approx 450$  fs gut mit den Germanium Quantenfilmen verglichen werden können[50].

Die Abhängigkeit der THz Feldstärke auf die Absorption ist in Abbildung 3.9 gezeigt. Der Zeitversatz zwischen optischem und THz Impuls wurde dabei auf eine maximale Aufspaltung optimiert. Der Verlauf zeigt zunächst eine Blauverschiebung der Resonanz, die dann ab etwa 6 kV/cm zusätzlich mit einer Aufspaltung der exzitonischen Resonanz überlagert wird.

Um den Verlauf der Resonanzen besser verfolgen zu können, sind in Abbildung 3.10b

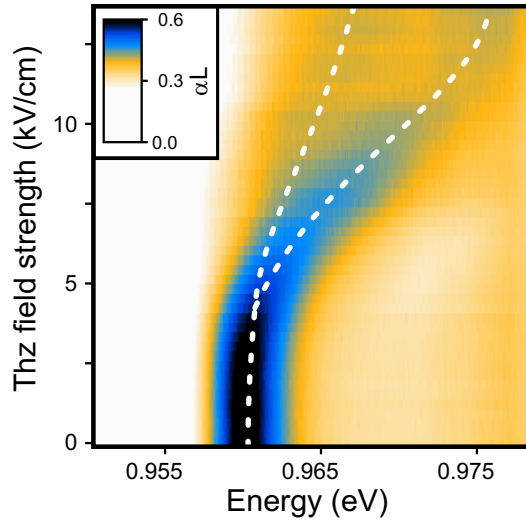


Abbildung 3.9: Abhängigkeit der Absorption der Probe #8009 von der THz Feldstärke als 2D Falschfarbendarstellung. Die weiß gestrichelte Linie deutet den Verlauf der Maxima der Absorption an.

deren relative Lage, die Größe der Aufspaltung, sowie die Absorption an der Stelle der Resonanz der nichtangeregten Probe in Abhängigkeit der THz Feldstärke gezeigt. Der Vergleich mit der entsprechenden Darstellung für die (GaIn)As Probe in Abbildung 3.10a zeigt einen ähnlichen Verlauf der Resonanzen. Nach einer anfänglichen Blauverschiebung kommt es ab etwa 6 kV/cm zu einer Aufspaltung der Resonanz. Aufgrund der spektralen Breite der Resonanz, kann diese aber erst ab einer Aufspaltung von etwa 3 meV hinreichend genau bestimmt werden. Bei dem Vergleich mit (GaIn)As fällt die in Germanium hohe nötige Feldstärke zur Spaltung der Resonanz auf. Diese liegt einen Faktor sechs über den 1 kV/cm, die in (GaIn)As zur Aufspaltung der Resonanz führte. Das Verhältnis dieser beiden Werte liegt nahe an dem Verhältnis der Dephasierungszeiten in den beiden Materialien ( $T_2^{(GaIn)As} / T_2^{Ge} \approx 4,3^5$ ). Das Auftreten der Aufspaltung wird also nur von dem zeitlichen Überlapp des THz Feldes mit der kohärenten Polarisation bestimmt. Im Gegensatz zu der Messung an (GaIn)As wird jedoch bei Germanium kein Bereich gefunden, in dem die Aufspaltung der Resonanz rein linearer in der Feldstärke ist. Statt dessen kommt es im Bereich von 7,5 - 9 kV/cm zur Ausbildung eines Plateaus, in dem die Aufspaltung konstant ist. Vor und hinter diesem Plateau können jedoch zwei nahezu lineare Bereiche identifiziert werden. Die Ausbildung des Plateaus spiegelt sich auch in der Transiente der Absorption wieder, welche in dem gleichen Bereich auch einen schwächeren Abfall zeigt. Aufgrund der großen Linienbreite der Resonanz fallen im Falle von Germanium alle exzitonischen

<sup>5</sup>für  $T_2^{Ge} \approx 250$  fs, Veröffentlichung in Vorbereitung

Übergänge in diese eine Linie. Dies führt jedoch dazu, dass prinzipiell die Änderungen aller optisch erlaubten Übergänge mit beobachtet werden, was einen Grund für die reichere Dynamik des Signals geben kann. Im dritten Bereich, der in Germanium ab etwa 12 kV/cm beginnt, ist wie auch bei (GaIn)As eine Sättigung und sogar ein leichter Rückgang der Aufspaltung zu beobachten. In diesem Bereich ist ausserdem ein Rückgang der Blauverschiebung der Resonanz zu beobachten. Der Grund für den Rückgang ist zum einen in der wie im Falle von (GaIn)As schon betrachteten Ionisierung der Exzitonen zu suchen, zusätzlich spielt auch der dynamische Franz-Keldysh Effekt eine Rolle, der zusätzlich eine Rotverschiebung der Resonanz erzeugt [50].

Wie im Falle der (GaIn)As Quantenfilme konnte also auch in den Germaniumquantenfilmen die Ausbildung des Autler-Townes Effektes beobachtet werden. Dieses ist insbesondere vor dem Hintergrund erstaunlich, dass es sich bei dem Material um einen indirekten Halbleiter mit dementsprechend kurzer  $T_2$  Zeit handelt. Das Intensitätsverhalten der beobachteten Aufspaltung zeichnet sich gegenüber (GaIn)As durch eine wesentlich reicheren Dynamik aus. Damit liefern diese Messungen eine Grundlage für weiterführende theoretische Betrachtungen, welche Aufschluss über die Ursache dieser Unterschiede geben können. Welchen dramatischen Effekt solch feine Unterschiede geben können, zeigte schon die Auswertung für (GaIn)As, welche die typischerweise angewendeten Zwei-Niveau Modelle als unzureichend für die physikalisch korrekte Beschreibung des Systems indentifizierte. Ein tiefgreifendes Verständnis der Unterschiede, zwischen Germanium und (GaIn)As kann somit einen klareres Bild über die dominierenden Beiträge solcher nichtlinearer Prozesse liefern.

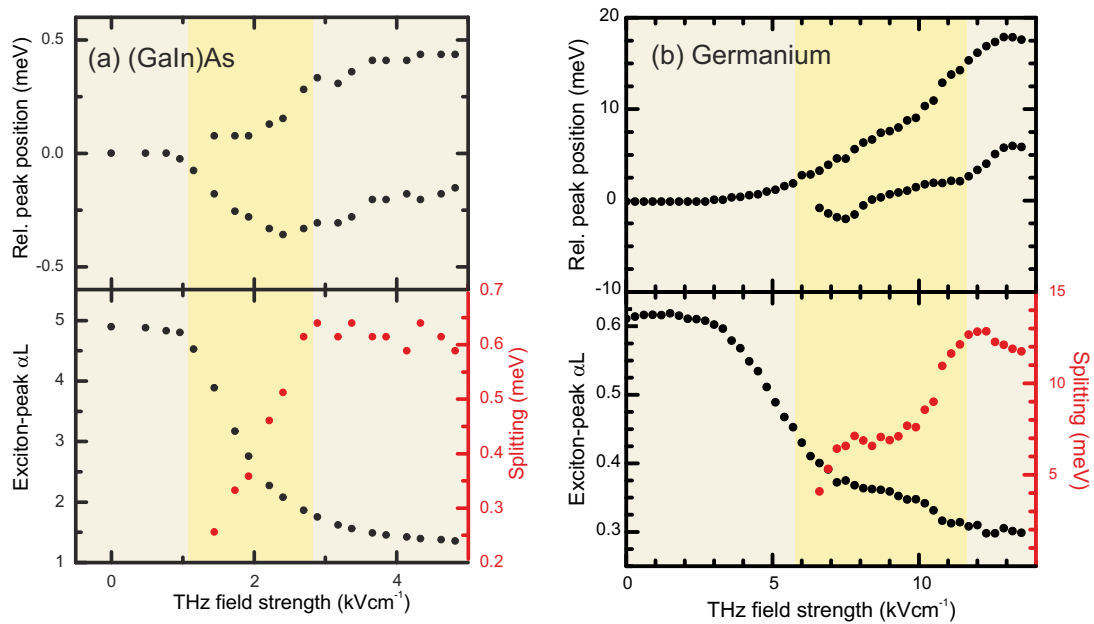


Abbildung 3.10: **a** Analog zu Abbildung 3.4 die Ergebnisse für (GaIn)As zum einfachen Vergleich. **b** Auswertung der Messung aus Abbildung 3.9, bzgl. des Verhaltens der relativen Position der Resonanzen (oben), der Aufspaltung der Linie (unten, rot), sowie der Absorption an der Exzitonenresonanz (unten, schwarz) in Abhängigkeit der Energie gezeigt.

## 3.2 Dynamischer Stark-Effekt

Der klassische Stark-Effekt beschreibt die energetische Verschiebung und Aufspaltung von Zuständen bei Anlegen eines statischen elektrischen Feldes. Er wurde 1913 von Johannes Stark zum ersten mal an Atomspektren beobachtet. Die systematische Erforschung des Effektes hat dabei geholfen einen tiefen Einblick in die Eigenschaften der elektronischen Zustände in Atomen zu erlangen. Auch in der Festkörper- und auch speziell in der Halbleiterphysik spielt er eine wichtige Rolle und findet eine Anwendung beispielsweise in elektro-optischen Modulatoren [20].

Im Unterschied zum klassischen Stark-Effekt beschreibt der dynamische (AC<sup>6</sup>; in diesem Zusammenhang etwa Wechselfeld-Stark-Effekt) Stark-Effekt das Verhalten von Materie unter Einstrahlung eines elektromagnetischen Wechselfeldes mit einer Frequenz nahe eines elektronischen Überganges im Material. Abbildung 3.11 zeigt eine der ersten Messungen dieses Effektes an einer GaAs Multiquantenfilm Probe (MQW).

Zur theoretischen Betrachtung des dynamischen Stark-Effektes wird häufig ein quan-

<sup>6</sup>engl.: **a**lternating **c**urrent

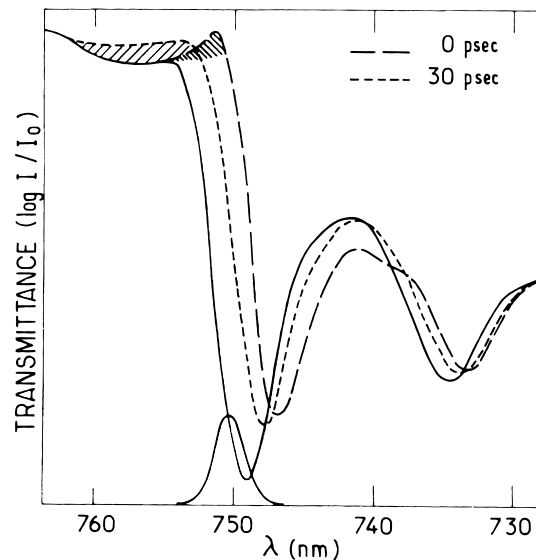


Abbildung 3.11: Transmission durch eine GaAs MQW Probe mit einer Temperatur von 15 K. Das Diagramm zeigt die Änderung der linearen Transmission (durchgezogene Linie) während (lange Striche) und 30 ps nach (kurze Striche) der Anwesenheit eines 150 fs langen Laserimpulses. Die Transmission zeigt neben der Blauverschiebung der exzitonen Resonanz die Ausbildung eines Spektralen Bereiches mit optischer Verstärkung. (Aus Ref. [41])

tenmechanisches System aus zwei Zuständen benutzt. In der Atomphysik ist diese Vereinfachung meist ausreichend. Aufgrund seines großen Erfolges in der Beschreibung des dynamischen Stark Effektes in Atomen wird dieses Modell gerne auch in Halbleitern herangezogen [41, 53]. Damit werden jedoch Bänder mit kontinuierlichen Energieniveaus auf einzelne Zustände reduziert und die Vielteilchennatur der zugrundeliegenden Zustände wird vernachlässigt. So ist es nicht verwunderlich, dass die Anwendung des Zweiniveausystems häufig nicht einmal qualitativ das richtige Ergebnis liefert.

Diese Abweichungen waren der Anlass zur Entwicklung von theoretischen Modellen, die sowohl eine qualitative wie auch quantitative Erklärung des beobachteten Verhaltens lieferten. Sehr erfolgreich haben sich in diesem Zusammenhang die Halbleiter-Bloch-Gleichungen erwiesen. Diese Gleichungen wurden aus verschiedenen Ansätzen entwickelt. Beispielsweise ausgehend von nichtgleichgewichts Greensfunktionen [54], basierend auf Projektionsoperatoren [55] (vergl. Kapitel 2.1.1), sowie mit Hilfe eines Dichtematrix Formalismuses [56].

### 3.2.1 Dynamischer Stark-Effekt in (GaIn)As

Aufgrund der optischen Auswahlregeln in GaAs wird mit einem zirkular polarisierten optischen Feld je ein Spinsubband des Leicht- und Schwerlochbandes an eines der beiden spinentarteten Leitungsbänder gekoppelt (vergl. Kap. 2.1.3 und Abb. 3.13). Im Falle einer Anregung der Probe mit  $\sigma_+$ -polarisiertem Licht ergeben sich daher verschiedene Antworten des Halbleiters für eine Abfrage mit  $\sigma_+$ -, bzw. mit  $\sigma_-$ -polarisiertem Licht.

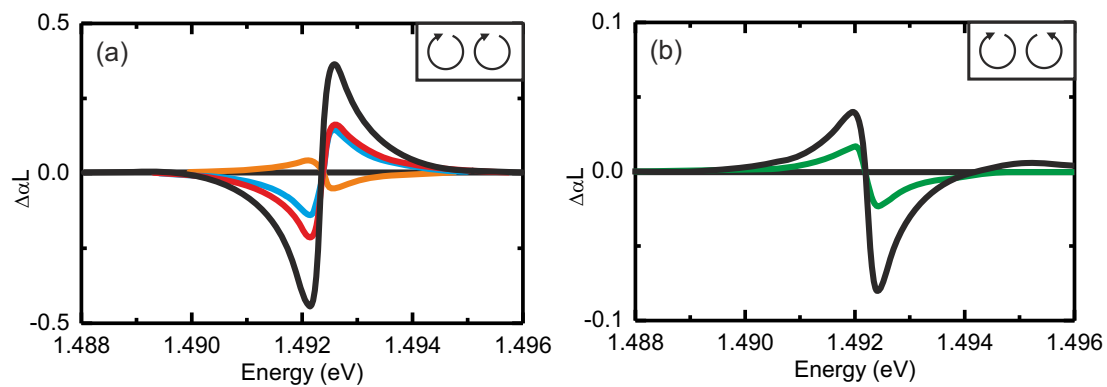


Abbildung 3.12: Theoretisch berechnete differenzielle Absorptionen für den Dynamischen Stark-Effekt in GaAs, bei einer Anregung von 4,5 meV unterhalb der Bandkante ohne Zeitversatz zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Abbildung **a** zeigt das differenzielle Signal bei gleichläufig zirkularer Polarisation ( $\sigma_+\sigma_+$ ) (schwarze Kurve): Pauli-Blockade (rote Kurve), 1. Ordnung Coulombbeiträge (blaue Kurve) und höhere Coulombkorrelationen (orange Kurve). In Abbildung **b** ist das Ergebnis für gegenläufig zirkuläre Polarisation ( $\sigma_+\sigma_-$ ) dargestellt (schwarze Kurve). Die grüne Kurve zeigt die gleiche Rechnung ohne biexzitonische Beiträge. (aus Ref. [57])

Bei einer Probe mit sehr schmalen Linienbreiten ergibt sich bei nichtresonanter Anregung für gegenläufig zirkuläre Polarisation eine Rotverschiebung<sup>7</sup> der exzitonischen Resonanz. Bei gleichläufig zirkularer Polarisation wird hingegen eine Blauverschiebung<sup>8</sup> beobachtet. Abbildung 3.12a zeigt das Ergebnis einer auf Halbleiter-Bloch-Gleichungen basierenden Rechnung für den  $\sigma_+\sigma_+$  Fall. Im Gegensatz zum Experiment erlaubt die Theorie einzelne Effekte gezielt ein und aus zu schalten, wodurch das Signal in seine einzelnen Bestandteile zerlegt werden kann. Die beiden wichtigsten Anteile am differenziellen  $\alpha L$ -Signal hat der Pauli-Blockade Term, sowie die Coulombwechselwirkung der Teilchen (siehe Kap. 2.1.1). Beide Anteile führen zu einer Blauverschiebung der Bandkante. Die Korrelationsterme höherer Ordnung erzeugen eine Rotverschiebung. Diese ist jedoch so klein, dass sie keinen wesentlichen Einfluss

<sup>7</sup>Rotverschiebung: energetische Verschiebung hin zu kleineren Energien

<sup>8</sup>Blauverschiebung: energetische Verschiebung hin zu größeren Energien

auf das differenzielle Signal hat. Für die  $\sigma_+\sigma_-$  Polarisationsgeometrie ergibt sich eine Rotverschiebung der Resonanz, wie in Abbildung 3.12b dargestellt. Dieses Ergebnis unterscheidet sich stark von dem Verhalten des dynamischen Stark-Effektes an atomaren Systemen, die für diesen Fall keine Verschiebung erwarten lassen. Auch eine Rechnung in Hartree-Fock Näherung sagt keine Verschiebung für diesen Fall voraus, solange die Leichtlochzustände vernachlässigt werden können. Aufgrund der Auswahlregeln können im  $\sigma_+\sigma_-$  direkt Biexzitonen durch Zweiphotonenprozesse angeregt werden. Durch die zusätzliche Bindungsenergie der Biexzitonen liegen diese energetisch unterhalb der exzitonenischen Resonanz. Demnach werden die Biexzitonenanregungen einen Beitrag zu der beobachteten Rotverschiebung haben. Ein künstliches Vernachlässigen der biexzitonischen Beiträge führt wie erwartet zu einem großen Rückgang der Rotverschiebung (Abb. 3.12b, grüne Linie), jedoch verbleibt auch ohne diesen Beitrag eine Rotverschiebung der Resonanz. Diese kann auf höhere Vielteilchenkorrelationen zurückgeführt werden.

Um die Rotverschiebung aufgrund des dynamischen Stark-Effektes beobachten zu können, ist es entscheidend, die Anregung energetisch weit von den Leichtlochzuständen zu separieren. Falls die Leichtlochbeiträge einen signifikanten Einfluss auf das Signal haben, tritt auch im  $\sigma_+\sigma_-$  Fall eine Blauverschiebung auf. In diesem Falle wird auch an der Schwerlochresonanz die Kopplung des Leichtlochbandes an das andere elektronische Spinsubband beobachtet (vergl. Abb. 3.13).

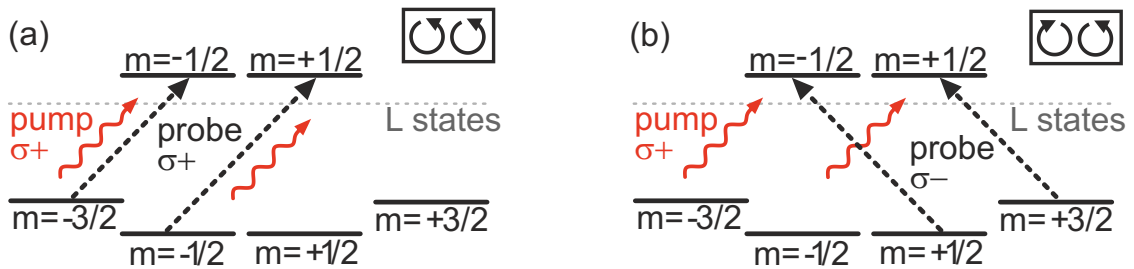


Abbildung 3.13: Schema für die Anregung einer Germanium Probe mit gleichläufig zirkularem **a** und einer gegenläufig zirkularem **b** Polarisationsgeometrie. Die Pfeile zeigen die jeweils möglichen dipolerlaubten optischen Übergänge mit zirkular polarisiertem Licht. Die direkten optischen Übergänge gehen von den Leichtloch- ( $m = \pm 1/2$ ) und Schwerlochzuständen ( $m = \pm 3/2$ ) zu den Leitungsbandzuständen am  $\Gamma$ -Punkt (oben). Das absolute Leitungsbandminimum am L-Punkt ist zur Vollständigkeit als gestrichelte Linie eingezeichnet, hat aber keinen direkten Einfluss auf den dynamischen Stark-Effekt.

Die Kopplung zwischen Leicht- und Schwerlochband erklärt die Eingangs geforderte schmale Linienbreite der Probe. Falls die untersuchte Probe eine starke inhomogene Verbreiterung aufweist, ist es unter Umständen nicht möglich gezielt dominant

an die Schwerlochresonanz zu koppeln. Dieses Verhalten wurde beispielsweise bei GaAs/AlGaAs Quantenfilmen beobachtet.[58]

#### 3.2.2 Dynamischer Stark-Effekt in Germanium

Nach der Betrachtung des dynamischen Stark-Effektes in GaAs und (GaIn)As stellt sich die Frage, in wie weit die indirekte Bandstruktur des Germaniums einen Einfluss auf diesen Effekt hat. Um dieser Frage nachzugehen, wurden das Verhalten der Germanium Quantenfilmprobe vermessen.

Aufgrund des großen Impulsunterschiedes zwischen dem Valenzbandmaximum am  $\Gamma$ -Punkt und dem Leitungsbandminimum am L-Punkt ist dieser Übergang dipolverboten. Zwar können diese Zustände über Phononen an einander gekoppelt werden, dies führt jedoch zu wesentlich kleineren Oszillatorstärke im Vergleich zu dem dipol erlaubten Übergang am  $\Gamma$ -Punkt. Daher hat das indirekte Leitungsbandtal keinen direkten Einfluss auf den dynamischen Stark-Effekt. Die weiteren Betrachtungen können also wie in Abbildung 3.13 gezeigt auf die Übergänge von den Leichtloch- ( $m=\pm 1/2$ ) und Schwerlochzustände ( $m=\pm 3/2$ ) zu den Leitungsbandzuständen  $\Gamma$ -Punkt reduziert werden.

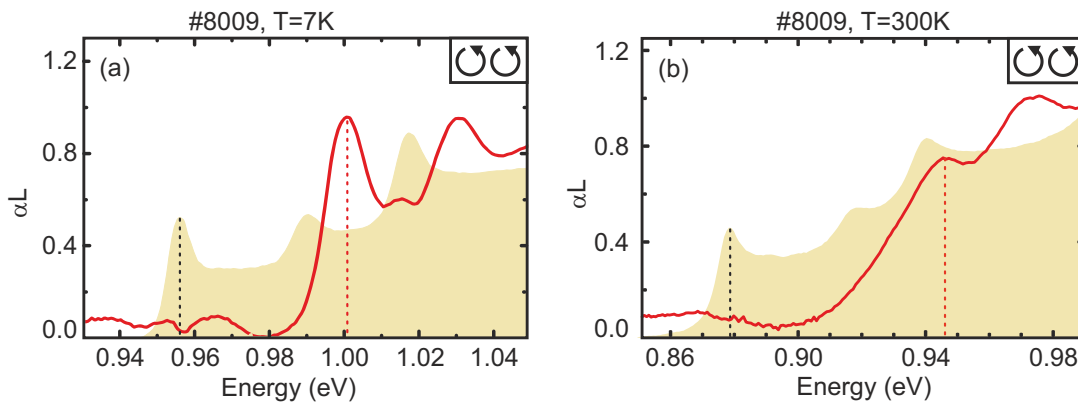


Abbildung 3.14: Absorption der Probe #8009 ohne Anregung (gelbe Flächen), sowie bei einer Anregung und Abfrage der Absorption der Probe mit gleichläufig zirkularer Polarisationsgeometrie (rote Kurven). Abbildung **a** zeigt eine Messung bei einer Proben-temperatur von 7K. Die Probe wurde dabei 10 meV unterhalb der direkten Bandkante, mit einer Photonenflussdichte von  $4 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. In Abbildung **b** ist eine Raumtemperaturmessung für eine Anregungsenergie von 24 meV unterhalb des Bandkante bei einer Photonenflussdichte von  $7 \times 10^{16}$  Photonen/cm<sup>2</sup>

Die Ergebnisse einer Messung an der Germanium Quantenfilmprobe ist in Abbildung 3.14 gezeigt. Die Probe wurde mit  $\sigma_+\sigma_+$  polarisiertem Licht bei Raumtempe-



ratur und in einem weiteren Experiment bei Temperatur von 7 K vermessen. Der zeitliche Versatz zwischen Anrege- und Abfrageimpuls wurde so gewählt, dass sich die größtmögliche Verschiebung ergibt. Der dynamische Stark-Effekt zeigt sich bei beiden Temperaturen deutlich als Blauverschiebung der Bandkante. Die höheren Zustände weisen aufgrund des höheren energetischen Unterschiedes zum anregenden Feld eine kleinere Verschiebung auf, was effektiv dazu führt, dass die Zustände im angeregten Spektrum enger zusammenrücken. Dieses wird durch das kleinere Interbanddipolmatrixelement  $d_{cv}$  der von den Leichtlochzuständen ausgehenden Übergänge und der somit schwächeren Kopplung an das elektrische Feld noch zusätzlich verstärkt. Für GaAs ist das Verhältnis der beiden Matrixelemente von Schwer- und Leichtloch 3:1 [58]. Dies führt in der Raumtemperaturmessung (Abb. 3.14b) sogar dazu, dass die Zustände  $LH1-e\Gamma_1$  und  $HH2-e\Gamma_2$  energetisch in einander laufen und ununterscheidbar werden.

Generell zeigen Messungen bei Raumtemperatur eine wesentlich größere Verbreiterung der exzitonischen Resonanzen. Dies gilt sowohl in der linearen Absorption, als auch verstärkt im Fall der angeregten Probe. Dies führt dazu, dass die einzelnen Beiträge der verschiedenen Übergänge nicht mehr so klar von einander getrennt werden können. Auch ist es durch die Verbreiterung der Resonanzen schwer gezielte den Einfluss des treibenden elektrischen Feldes auf einzelne Übergänge zu studieren. Daher werden im Folgenden nur noch Messungen bei tiefen Temperaturen betrachtet.

Zunächst wird nun die Polarisationsabhängigkeit des dynamischen Starkeffektes in Germanium näher betrachtet werden. Danach wird die Abhängigkeit von der Intensität und der Verstimmung des anregenden elektrischen Feldes diskutiert. Für Anregungen energetisch knapp oberhalb der exzitonischen Resonanz, kann dabei neben dem dynamischen Stark Effekt auch die Ausbildung einer optischen Verstärkung ohne Ladusträgerinversion, sowie eines Mollow Triplets beobachtet werden. Um die verschiedenen Effekte trennen zu können, werden dazu Ergebnisse aus zeitlich und energetisch aufgelöste Messdaten diskutiert. Zum Schluss wird dann das Verhalten des Effektes bei einer Anregung der Probe in das Kontinuum des ersten Leichtlochüberganges dargestellt.

#### **Polarisationsabhängigkeit**

Wie im Falle von GaAs [58, 59], hat die Polarisationsgeometrie einen starken Einfluss auf das beobachtete Verhalten der Probe. Analog zu den vorherigen Kapiteln

wird hier die Dynamik der Probe für gleichläufig- und gegenläufig zirkuläre Polarisati-  
on von Anrege- und Abfrageimpuls diskutiert, Spinsubbänder getrennt von einander  
betrachten zu können. Abbildung 3.15 zeigt eine Messung der Polarisationsabhängig-  
keit des dynamischen Stark-Effektes an der Germanium Quantenfilmprobe #8009.  
Dargestellt ist hier die differenzielle Absorption der Probe, bei einer energetischen  
Verstimmung des Anregeimpulses von 5 meV unter der Bandkante. Angeregt wurde  
die Probe mit einem Photonenfluss von  $1,5 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Messung zeigt

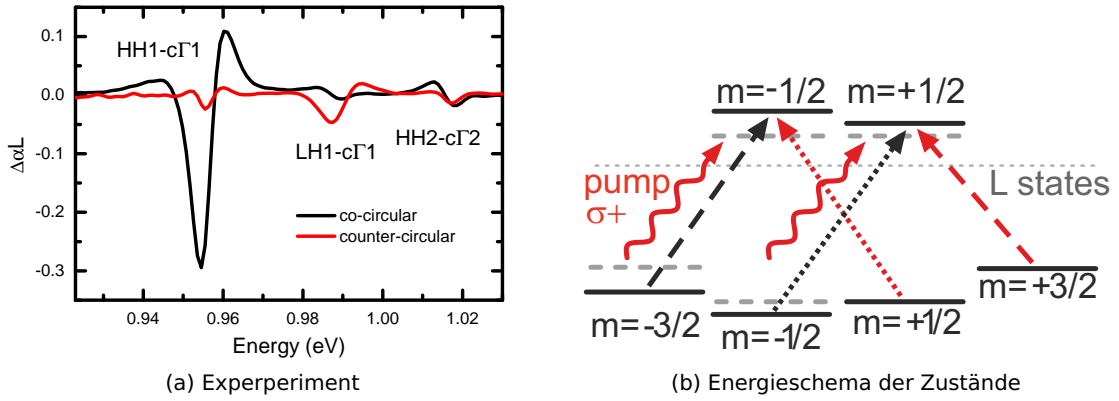


Abbildung 3.15: Die Messung in **a** zeigt die differenzielle Absorption der Probe #8009 bei 7 K und einer Anregung mit  $1,5 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>, 5 meV unterhalb der Bandkante. Für den zeitliche Versatz zwischen Anrege- und Abfrageimpuls wurde der Punkt der maximalen Verschiebung gewählt. Die schwarze Kurve zeigt das Verhalten für eine  $\sigma_+ \sigma_+$  Polarisation, die rote Kurve für eine  $\sigma_+ \sigma_-$  Polarisation. Abb. **b** zeigt schematisch die Verschiebung von Leicht- und Schwerlochzuständen (gepunktete, bzw. gestrichelte Pfeile) für die beiden Polarisationen aus **a**. Die roten geschwängelten Pfeile deuten die Kopplung der Zustände durch das elektrische Feld des Anregeimpulses.

für die  $\sigma_+ \sigma_+$  Polarisation (schwarze Kurve) eine starke Blauverschiebung des ersten Schwerlochüberganges (HH1-c $\Gamma$ 1) von 6 meV, sowie leichte Rotverschiebungen des ersten Leichtlochüberganges (LH1-c $\Gamma$ 1) und des zweiten Schwerlochüberganges (HH2-c $\Gamma$ 2). Während die Blauverschiebung der HH1-c $\Gamma$ 1-Resonanz dem Erwarteten entspricht, ist die Rotverschiebung der anderen beiden Übergänge zunächst erstaunlich. Eine zeitliche Analyse dieser beiden Verschiebungen zeigt jedoch keine Veränderung dieser Signaturen innerhalb der ersten Pikosekunden nach dem Anregeimpuls. Daher ist ein kohärenter Prozess als Quelle ausgeschlossen und es bleibt nur noch eine Verschiebung aufgrund der Bandkantenrenormalisierung durch angeregte Ladungsträger. Zwar wird die Probe unterhalb der direkten Bandkante angeregt, aber aufgrund der spektralen Breite des Anregeimpulses sowie der Linienbreite der Resonanz, ist eine geringe Restabsorption nicht ausgeschlossen. Zudem sind auch noch phononassistierte Absorptionen von Elektronen zum L-Tal und Mehrphotonenanregungen möglich. Mit steigenden Photonenflüssen beobachtet man auch tatsächlich, dass

diese kleinen Rotverschiebungen durch die wesentlich stärker werdenden Blauverschiebungen aufgrund des dynamischen Stark-Effekt überlagert werden.

Das Experiment mit der  $\sigma_+\sigma_-$  Polarisation (rote Kurve) zeigt ein wesentlich anderes Bild. Die HH1-c $\Gamma$ 1 und HH2-c $\Gamma$ 2 Resonanzen sind lediglich etwas verbreitert und ein wenig ausgebleicht, während die LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz nun eine Blauverschiebung von 6 meV aufweist. Dieses Verhalten lässt sich an der Schemazeichnung in 3.15b erklären. Bei  $\sigma_+\sigma_-$  (rot gestrichelte Übergänge) wird die HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz zwischen dem  $m_h = -3/2$  und  $m_e = -1/2$  am stärksten vom treibenden Feld beeinflusst, während der LH1-c $\Gamma$ 1 Übergang nur die wesentlich schwächere Kopplung zwischen dem  $m_h = -1/2$  und  $m_e = +1/2$  Zuständen spürt. Für das Experiment mit der  $\sigma_+\sigma_-$  Polarisation ist dieses gerade entgegengesetzt. Nun zeigt die LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz die Veränderung des Überganges zwischen dem energetisch unveränderten  $m_h = +1/2$  Zustand und dem elektronischen Zustand  $m_e = -1/2$  der durch die starke Kopplung an den  $m_h = -1/2$  Zustand eine große Verschiebung erfährt. Der HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang liegt jetzt zwischen dem  $m_h = +3/2$  und dem  $m_e = +1/2$  Zustand, die beide keine Änderung durch das treibende elektrische Feld erfahren. Es fällt auf, dass die beobachtete Verschiebung des Leichtlochüberganges bei  $\sigma_+\sigma_-$  trotz des gleichen Wertes, ein wesentlich kleineres Signal liefert, als die Schwerlochresonanz im  $\sigma_+\sigma_+$  Experiment. Dies liegt an der kleineren Oszillatorstärke des Leichtlochüberganges, welche die absolute Änderung in der linearen Absorption bei gleicher Verschiebung kleiner werden lässt.

Im Vergleich zu (GaIn)As fällt auf, dass hier keine Rotverschiebung der Resonanz beobachtet wird. Dies überrascht zunächst, da die im Falle von (GaIn)As identifizierten biexzitonischen Beiträge, wie auch die höheren Vielteilchenkorrelationen auch in Germanium anzutreffen sein sollten. Die große Verbreiterung der HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz macht es allerdings schwierig, diese auch beobachten zu können. Zudem führt diese in Verbindung mit der spektralen Breite des anregenden elektrischen Feldes zu einer Überlagerung verschiedener spektraler Signaturen, die aufaddiert wiederum ein Auswaschen des Signals hervorrufen. Dies führt dazu, dass die Rotverschiebung in der beobachteten Verbreiterung der Resonanz verschwindet.

#### **Abhängigkeit von der Intensität der Anregung**

Mit steigender Intensität der Anregung steigt auch die Stärke der Bandverschiebung. In diesem Abschnitt wird das Verhalten dieser Abhängigkeit dargestellt. Dazu wird die

transiente Absorption bei gleichläufig zirkularer Polarisation von Anrege- und Abfrageimpuls betrachtet. Abbildung 3.16a zeigt eine Messung der Intensitätsabhängigkeit bei einer konstanten Verstimmung des Anregeimpulses von 8 meV unterhalb der Bandkante für Photonenflussdichten des Anregeimpulses von  $1 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> bis  $35 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Es wurde der zeitliche Versatz der beiden Laserimpulse gewählt, der die größte Bandkantenverschiebung zeigt. Dieser Versatz ist typischerweise bei negativen Zeiten in der Nähe der Zeitnull, d.h. der Anregeimpuls erreicht die Probe einige fs nach dem Abfrageimpuls. Dieses Verhalten hängt jedoch kritisch von dem zeitlichen FWHM der beiden Impulse, sowie der Dephasierungszeit der Abfragepolarisation ab [60, 61]. Trägt man das Quadrat der Verschiebung über die Photonenflussdichte auf, wie in Abb. 3.16b, erkennt man einen linearen Zusammenhang zwischen den beiden Größen. In der Literatur wird diese Abhängigkeit häufig mit einem 2-Niveau-System beschrieben, da dies einen analytisch lösbaren Zusammenhang für diese Abhängigkeit liefert [41]. Die energetische Verschiebung  $\hbar\omega^*$  eines solchen Systems ist dann

$$(3.1) \quad \hbar\omega^* = [(\hbar\Delta)^2 + (\hbar\Omega)^2]^{1/2}.$$

Dabei ist  $\hbar\Delta = \hbar\omega - \hbar\omega_0$  die Verstimmung des anregenden Lasersimpulses der Energie  $\hbar\omega$  von der Resonanzenergie der exzitonischen Resonanz  $\hbar\omega_0$ . Die Größe  $\Omega = d_{cv}\hbar^{-1}|\mathcal{E}|$  ist die zugehörige Rabi-Frequenz mit dem Interband-Dipolmatrixelement  $d_{cv}$  und dem Betrag des elektrischen Feldes  $|\mathcal{E}|$ .

Die im Experiment genutzten Photonenflussdichten ergeben mit einem  $d_{cv}$  von 7 eÅ Rabi-Energien im Bereich von  $\hbar\Omega = 23$  bis 270 meV. Das benutzte Dipolmatrixelement wurde durch eine Anpassung eines mikroskopischen Zweibandmodelles an die lineare Absorption bestimmt [62]. Die im Experiment verwendete Verstimmung der Anregung von 9 meV erlaubt in Anbetracht der hohen Rabienergien die Näherung  $(\hbar\Delta)^2 \ll (\hbar\Omega)^2$ . Damit erhält man eine lineare Abhängigkeit zwischen dem Quadrat der Energieverschiebung und der Intensität des treibenden elektrischen Feldes, in der Form  $(\hbar\omega^*)^2 \propto |\mathcal{E}|^2$ . Diese Abhängigkeit zeigt sich in der Tat auch in den experimentellen Daten, wie in Abbildung 3.16b gezeigt.

Allerdings ignoriert die Anwendung eines Zweiniveausystems die grundlegende Vielteilchennatur des Systems. Dieses wird insbesondere klar, wenn man die Größe der vorausgesagten Verschiebung mit der gemessenen vergleicht. Dazu kann die Formel 3.1 an die in Abb. 3.16b gezeigten Daten angepasst werden. Wählt man  $d_{cv}$  als

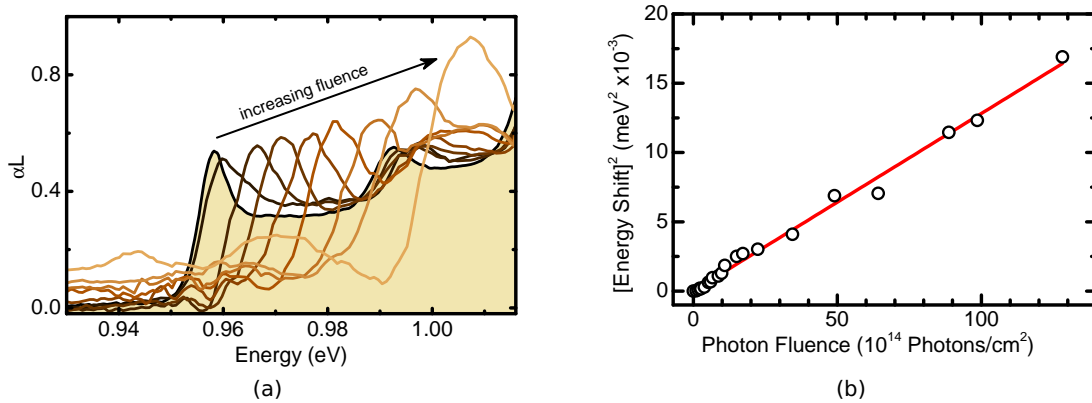


Abbildung 3.16: Abbildung **a** zeigt die Änderung der linearen Absorption der Probe #8009 bei  $T=7 \text{ K}$  mit steigender Intensität des Anregimpulses. Die Anregung erfolgte unter einer  $\sigma_+\sigma_+$  Polarisation, bei einer konstanten Anregungsenergie von  $0,95 \text{ meV}$ , also mit einer Verstimmung von  $8 \text{ meV}$ . Die Intensität der Anregung betrug (von schwarz nach braun, in  $10^{14} \text{ Photons/cm}^2$ ): 1, 1,7, 3,9, 5,2, 6,7, 12, 17, 35. In Abb. **b** ist das Quadrat der Verschiebung der Bandkante in Abhängigkeit der Photonenflussdichte der Anregung aufgetragen.

Anpassungsparameter, erhält man hierfür einen Wert von  $140 \text{ eÅ}$ . Dieses Ergebnis liegt mehr als eine Größenordnung über dem aus der linearen Absorption gewonnenen Wert. Trotz des auf der ersten Blick qualitativ richtigen Beschreibung des Systems durch ein Zweiniveausystem kann also davon ausgegangen werden, dass die Vielteilchenkorrelationen einen wichtigen Einfluss auf den Effekt haben.

Zum Vergleich der hier gemessenen Werte mit klassischen direkten Halbleitern findet man in der Literatur beispielsweise für  $(\text{GaIn})\text{As}/\text{GaAs}$  Quantenfilme Bandkantenverschiebungen von bis zu  $1 \text{ meV}$ , bei Photonenflussdichten von  $3.5 \times 10^{12} \text{ Photons/cm}^2$  [63, 64]. Extrapoliert man die Daten für die Germanium Quantenfilme auf diese Flussdichten, erhält man eine Verschiebung von etwa  $2.2 \text{ meV}$ . Unter vergleichbaren Bedingungen ist die Verschiebung in den Germaniumquantenfilmen mehr als doppelt so hoch wie in den  $(\text{GaIn})\text{As}$  Quantenfilmen. Dieser Unterschied lässt sich zumindest teilweise durch die unterschiedlichen Dephasierungszeiten der beiden Materialien erklären. Die gemessene zeitgemittelte Transmission des Abfrageimpulses, hängt von der zeitlichen Faltung der optischen Antwort der angeregten Probe mit dem Verlauf der kohärenten Polarisation in der Probe ab. Die Veränderung der optischen Antwort des Materials folgt adiabatisch der Einhüllenden des Anregimpulses, da sich dieser energetisch unter der Bandkante befindet. [65] Daher reduziert eine kürzere Dephasierungszeit den zeitlichen Überlapp, der durch den Abfrageimpuls induzierten Polarisation mit dem Anregimpuls. Das wiederum erhöht die gemessene Verschiebung

der Bandkante durch den dynamischen Stark-Effekt. Die Größe des beobachteten Effektes in den Germaniumquantenfilmen ist also eine Konsequenz der schnellen Interbandstreuung der Elektronen zum L-Tal. Die Streuung der Elektronen erzeugt eine obere Grenze für die Dephasierungszeit des Materials was zu  $T_2$ -Zeiten in der Größenordnung von 1 ps führt. Dies ist mehr als eine Größenordnung kleiner als vergleichbare Dephasierungszeiten in GaAs [66].

Die Oszillation unterhalb der Bandkante bei hohen Flussdichten sind dem Effekt der transienten Verstärkung ohne Besetzungsinversion zuzuordnen [42, 55, 61, 65]. Bei hinreichend starkem Anregimpuls bilden diese Oszillationen Bereiche mit optischer Verstärkung ( $\alpha L < 0$ ) aus. Dieser Effekt wird jedoch teilweise durch die Mehrphotonenanregung des Abfrageimpulses im Substrat maskiert. Dabei regt ein Photon des Abfrageimpulses zusammen mit einem Photon des Anregimpulses ein Elektron-Loch-Paar im Substrat an. Voraussetzung dafür ist, dass Anrege- und Abfrageimpuls gleichzeitig im Substrat anwesend sind und dass diese auch anregbare Zustände mit Übergangsenergie gleich der Summe der Energie der beiden Photonen besitzen. Diese ist im Siliziumsubstrat gegeben, zudem ist die Zustandsdichte dieser Zustände flach, so dass sich die Mehrphotonenabsorption als ein konstanter additiver Beitrag in der gemessenen linearen Absorption auswirkt.

Zusammenfassend zeigt sich also eine lineare Abhängigkeit der beobachteten Verschiebung aufgrund des dynamischen Stark-Effektes von der Stärke des elektrischen Feldes. Dieses Verhalten deckt sich mit den Vorhersagen von Modellen auf der Basis von Zweiniveausystemen. Ein quantitativer Vergleich zeigt jedoch eine Diskrepanz zwischen den Messdaten und dem Modell, so erhält man bei der Anpassung von Formel 3.1 an die Messdaten ein Dipolmatrixelement, welches über eine Größenordnung zu groß ist. Das Versagen dieses Modells, kann auf die komplette Vernachlässigung der Vielteilchenwechselwirkungen in der Probe zurückgeführt werden. Extrapoliert man die hier für Germanium gewonnenen Werte, so dass sie mit Messungen an GaAs aus der Literatur verglichen werden können, zeigt sich in Germanium einen fast doppelt so großen Wert. Dieser Unterschied kann zum Teil auf die kürzere Dephasierungszeit der kohärenten Polarisation zurückgeführt werden.

#### **Abhängigkeit von der Verstimmung der Anregung**

Die Verstimmung des treibenden elektrischen Feldes hat einen starken Einfluss auf die Größe der gemessenen Bandkantenverschiebung. Wie in Kapitel 3.2.1 beschrie-

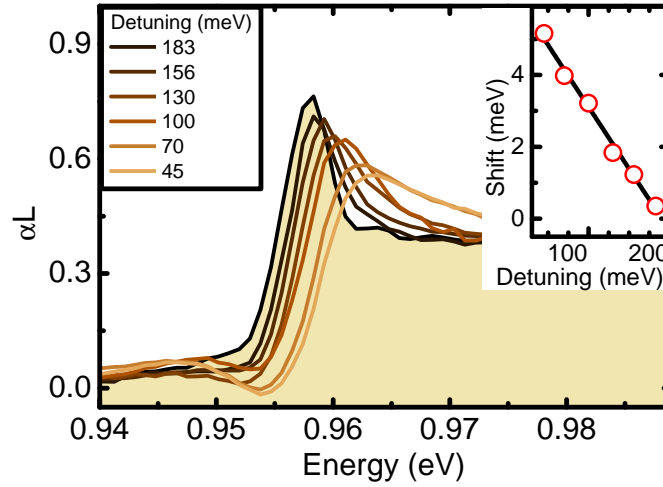


Abbildung 3.17: Abhängigkeit der Bandkantenverschiebung von der Verstimmung der Anregungsenergie bei konstanter Flussdichte. Der Graph zeigt Absorptionsspektren bei verschiedenen Verstimmungen des Anregeimpulses der Probe #8009 bei  $T=7$  K. Mit steigender Verstimmung (von braun nach schwarz) nimmt die Bandkantenverschiebung ab. Der Inset lässt einen linearen Zusammenhang zwischen den beiden Größen erkennen.

ben, sind die wichtigsten Beiträge am dynamischen Stark-Effekt der Pauli-Blockade Term, der Hartree-Fock Term, sowie die höheren Coulomb-Korrelationsterme. Dem entsprechend bestimmt die Abhängigkeit dieser Terme gegenüber der Verstimmung der Energie des Anregeimpulses maßgeblich das Verhalten des Effektes. Während der Pauli-Blockade Term  $\propto \hbar\Delta^{-1}$  abfällt, fallen die anderen beiden wesentlich schneller ab; der Hartree-Fock Term fällt  $\propto \hbar\Delta^{-2}$  ab, die höheren Coulomb-Korrelationsterme  $\propto \hbar\Delta^{-3}$ . Der Pauli-Blockade Beitrag wird mit steigender Verstimmung also immer dominanter. Da dieser eine Blauverschiebung der Bandkante hervorruft und er sich umgekehrt proportional zu der Verstimmung des treibenden elektrischen Feldes verhält, erwartet man für höhere Verstimmungen einen kontinuierlichen Rückgang der Verschiebung. Je nach der Gewichtung der drei Terme sollte dieser linear bis sublinear sein [61, 64].

Abbildung 3.17 zeigt eine Messung mit konstanten Photonenflussdichten und variiert Verstimmung des Anregeimpulses. Alle Anregungsenergien liegen unterhalb des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges und weisen Verstimmungen von 45 meV bis 183 meV zu diesem Übergang auf. Die Spektren zeigen eine klare Verbreiterung, sowie Verschiebung der exzitonischen Resonanz, welche mit steigender Verstimmung abnimmt. Mit kleinen Verstimmungen kann zudem die Ausbildung einer optischen Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion direkt unterhalb der Bandkante beobachtet werden (vergl.

Kap. 3.2.2). In dem Inset in Abbildung 3.17 ist die Verschiebung auf die Verstimmung des Anregeimpulses aufgetragen. Diese zeigt einen Rückgang des Effektes mit steigender Verstimmung des Anregeimpulses zur Resonanz, mit einem klar linearen Verlauf und entspricht damit dem erwarteten Verhalten. Für den vermessenen Verstimmungsbereich scheint daher der Pauli-Blockade Term bereits dominierend zu sein. An diesem Verhalten zeigt sich wiederum klar die Unzulänglichkeit der Beschreibung dieses Experimentes als getriebenes Zweiniveausystem. Dieses sagt, wie in Formel 3.1 zeigt, ein Steigen der Verschiebung mit größer werdender Verstimmung voraus[41].

#### Zeitliches Verhalten

Das zeitliche Verhalten des dynamischen Stark-Effektes wird wesentlich durch die Länge des Anregeimpulses bestimmt. Bei einer Anregung unterhalb der Bandkante des Materials hat der Effekt eine Lebensdauer von knapp 150 fs, wie in Abbildung 3.18 dargestellt. Dies ist etwas weniger als das doppelte zeitliche FWHM des anregenden Laserimpulses. Es handelt sich also um einen rein kohärenten Effekt bei der die Probe dem anregenden Feld adiabatisch folgt.

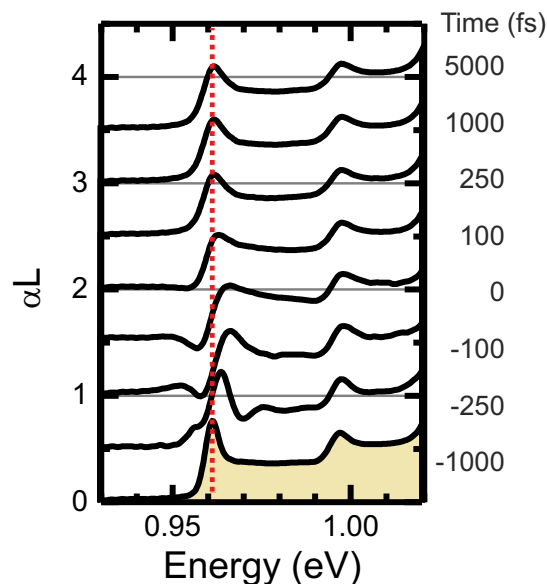


Abbildung 3.18: Die Abbildung zeigt das Zeitverhalten des dynamischen Stark-Effektes. Die Probe wurde bei 0,908 eV mit einer Verstimmung von 53 meV zur exzitonsichen Resonanz angeregt. Die Photonenflussdichte betrug  $4 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>.

Bei geringer Verstimmung des Anregelasers zur Bandkante und insbesondere wenn



er energetisch oberhalb der Bandkante anregt, kommt es zur Generation von einer Elektronen- und Lochbesetzung. Dies führt natürlich dazu, dass die Probe unmittelbar nach dem Anregeimpuls nicht direkt in den Grundzustand zurückkehrt. Stattdessen ist ein Ausbleichen sowie eine leichte Verschiebung der Resonanzen durch den Beitrag der angeregten Ladungsträgern zur Pauli-Blockade, Bandkantenrenormalisierung sowie Coulomb-Abschirmung zu beobachten.

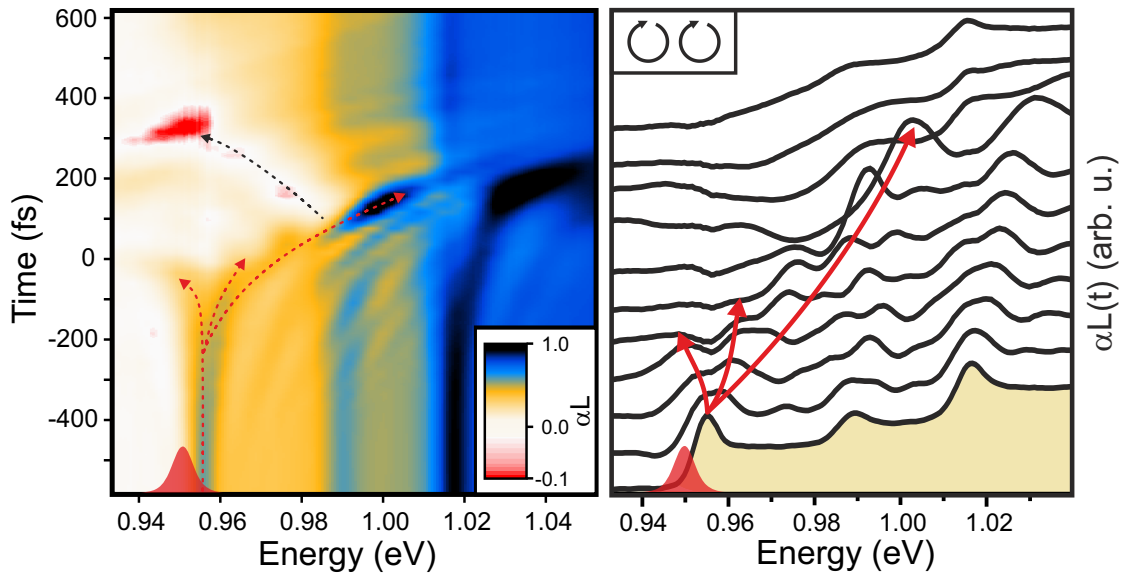


Abbildung 3.19: Der linke Teil der Abbildung zeigt die Absorption der Probe #8009 als 2D Falschfarbendarstellung in Abhängigkeit von der Energie sowie dem Zeitversatz zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die Probe wurde bei  $T=7$  K mit einer Energie des Abfrageimpulses von  $0.953$  eV,  $2.5$  meV (rote Fläche), sowie einer Photonenflussdichte  $2.5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Die Polarisation von Anrege- und Abfrage Impuls war gleichläufig zirkular ( $\sigma_+ \sigma_+$ ). Die rechte Seite zeigt Absorptionsspektren zu ausgewählten Zeiten dieser Messung (von unten nach oben; in fs):  $-600, -300, -200, -150, -100, -50, 0, 100, 150, 300$ . Die roten Pfeile deuten die Entwicklung der beobachteten Maxima auf, der schwarze Pfeil den Verlauf des Minimums, welches der optischen Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion zugeordnet wird.

Abbildung 3.19 zeigt die zeitliche Entwicklung des dynamischen Stark-Effektes für eine Anregung von nur  $2.5$  meV unterhalb der Bandkante. Aufgrund des Überlapps von Anregeimpuls und der Absorption der Probe, verbleibt nach der Anregung wie erwartet ein Ausbleichen der Absorption. Es fällt auf, dass zu frühen Zeiten zunächst eine Aufspaltung des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges in drei Resonanzen zu beobachten ist (rote Pfeile). Auf diese Aufspaltung wird im nächsten Kapitel näher eingegangen. Bei  $t=-100$  fs verschwinden die beiden niederenergetische Resonanzen jedoch und in den folgenden  $150$  fs ist eine kontinuierlich ansteigende Verschiebung der Bandkante um bis zu  $48$  meV zu beobachten. Gleichzeitig dazu kommt es zur Ausbildung einer optischen Verstärkung ohne Besetzungsinversion (schwarzer Pfeil) [42]. Die optische Ver-

stärkung, also negative Absorption, hat in der Falschfarbendarstellung eine rötliche Farbe. Aufgrund des Untergrundes der Zweiphotonenabsorption des Abfrageimpulses im Substrat genügt dieser Effekt nicht zu allen Zeiten für eine optische Verstärkung. Dies führt dazu, dass sich entlang des Verlaufes des Minimums kein durchgängig roter Bereich ausbildet, sondern teilweise nur eine Transparenz (weißer Bereich) der Probe erreicht wird. Zudem fällt in der Nähe des LH1-cF1 Überganges eine spektrale Modulation auf, die sich als abwechselnd orange und blaue Bereiche darstellt. Zu negativen Zeiten kommt diese Modulation teilweise von den kohärenten Oszillationen. Nach der Zeitnull sind diese aber als Quelle ausgeschlossen, da die spektrale Wellenlänge der Modulationen auch hier zu Null hin divergieren würde. Die hier beobachteten Modulationen weisen dagegen nicht die notwendige zeitliche Spiegelsymmetrie um die Zeitnull auf. Abbildung 3.20 zeigt einen Vergleich des Probenverhaltens für  $\sigma_+\sigma_+$  und  $\sigma_+\sigma_-$ . In beiden Messungen sind die kohärenten Oszillationen im Kontinuum des HH1-cF1 zu beobachten. Die starke Modulation in der Nähe der Zeitnull zeigt sich jedoch

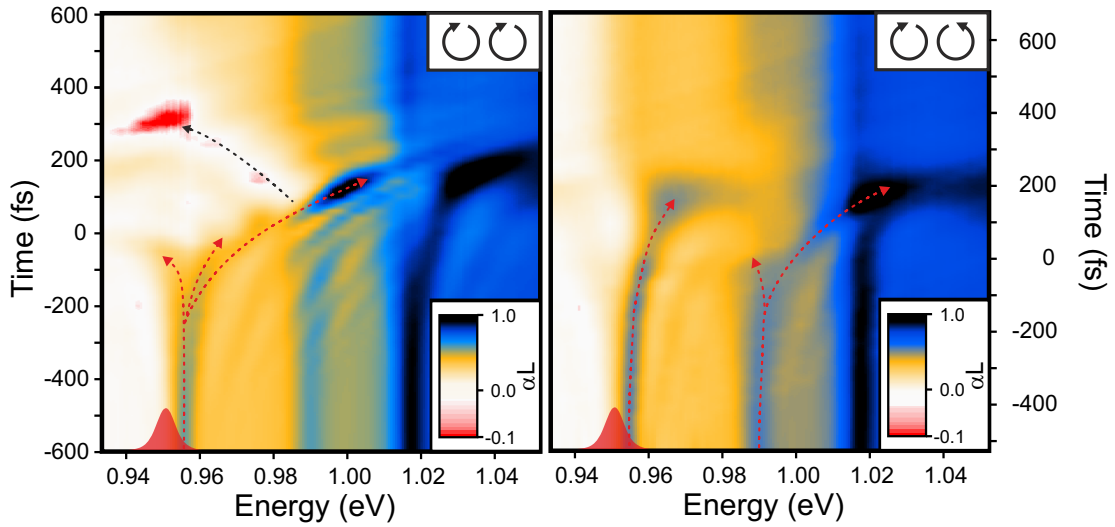


Abbildung 3.20: Polarisationsabhängigkeit der Messung aus Abb. 3.19. Links für  $\sigma_+\sigma_+$  und rechts für  $\sigma_+\sigma_-$

nur für die  $\sigma_+\sigma_+$  Messung. Dies bestätigt, dass es sich hierbei um einen kohärenten Vielteilcheneffekt handelt. Eine mögliche Quelle für diesen Effekt ist die spektrale Breite sowohl der Absorption der Resonanzen, wie auch des Anregimpulses. Die exzitonische Resonanz besteht aus einer Vielzahl von Zuständen mit verschiedenen  $\mathbf{k}$ . Durch die Breite dieser Zustände im  $\mathbf{k}$ -Raum kommt es neben einer resonanten Anregung einzelner Oszillatoren, zusätzlich zu einer nichtresonanten Anregung durch andere spektrale Teile des Anregimpulses. Damit gibt es jedoch keine diskrete Rabi-Frequenz mehr und im Vergleich zum Zweinivieausystem wie in Formel 3.1 muss man

wie in Kapitel 2.1.1 gezeigt zu einer verallgemeinerten Rabi-Frequenz übergehen:

$$\Omega_{\mathbf{k}} = d_{cv}\mathcal{E}_{opt} + \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} P_{\mathbf{k}'} \quad (3.2)$$

Diese so auftretenden verschiedenen Rabi-Frequenzen können zu starken Interferenzeffekten führen [65], welche das Auftreten der beobachteten Oszillationen in Transmissionsspektren erklären können. Ob diese Interferenzeffekte die Ursache der beobachteten Modulationen sind, ist jedoch experimentell nicht verifizierbar.

Das zeitliche Verhalten unterscheidet sich bei niedrigen Intensitäten des anregenden Impulses qualitativ kaum von dem Verhalten direkter Halbleiter[64]. Für nahresonante Anregungen kommt es jedoch aufgrund der großen Linienbreiten zu einem nach der Anregung verbleibenden Ausbleichen der Resonanzen aufgrund der Anregung von Ladungsträgern. Insbesondere wird auch eine optische Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion beobachtet, welche auch in (GaIn)As erst kürzlich nachgewiesen werden konnte[42]. Zudem zeigen sich starke Modulationen im Kontinuum des HH1-C $\Gamma$ 1 Überganges. Diese konnten in direkten Halbleitern bisher nicht beobachtet werden, als mögliche Quelle dieser Modulationen, kommen Interferenzeffekte in der verallgemeinerten Rabi-Frequenz in Frage über deren Existenz in der Literatur bereits spekuliert wurde [65].

### Nahresonante Anregung: Mollow-Triplet

Wie im letzten Kapitel schon erwähnt, kommt es bei kleinen Verstimmungen des anregenden elektrischen Feldes zu der exzitonischen Resonanz des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges sowie der Aufspaltung der Resonanz. Dieses erinnert an den exzitonischen Autler-Townes Effekt aus Kapitel 3.1. Im Unterschied dazu handelt es sich hier jedoch um eine nahresonante Anregung des Interbandüberganges, wohingegen in Kapitel 3.1 die Ankopplung eines THz Impulses an die intraexzitonischen Übergänge betrachtet wurde. Damit werden hier auch Rabi Oszillationen des Interbandüberganges erwartet. Da hier also der getriebene Übergang auch direkt abgefragt wird, sollte die Ausbildung von Mollow Seitenbanden beobachtet werden.

Abbildung 3.21 zeigt schematisch die Polarisationsabhängigkeit einer solchen Aufspaltung. Wird das System mit einem starkem  $\sigma_+$  polarisiertem Anregeimpuls bestrahlt, kommt es zu einer Aufspaltung des  $m_h = -3/2$  und des  $m_e = -1/2$  Zustandes.

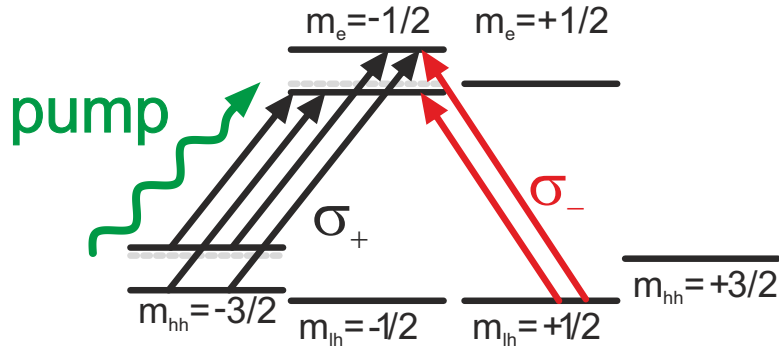


Abbildung 3.21: Schematische Darstellung der Aufspaltung der Energieniveaus durch anlegen eines treibenden elektrischen Feldes (grün). Für die verschiedenen Abfragepolarisationen ergibt sich für kozirkuläre Polarisation (schwarz) die Ausbildung von Mollow Seitenbanden, für gegenläufig zirkuläre Polarisation (schwarz) wird jedoch nur eine Spaltung der Resonanz erwartet.

Aufgrund des dynamischen Stark Effektes wird es nicht zu einem symmetrischen Aufspalten der beiden Zustände kommen. Fragt man das System nun mit einem  $\sigma_+$  polarisiertem Impuls ab, erhält man in der Transmission die Ausbildung eines energetisch blau verschobenen Mollow Triplets. Wird das System mit  $\sigma_-$  polarisiertem Licht abgefragt, betrachtet man den Übergang zwischen dem  $m_h = +3/2$  und dem  $m_e = +1/2$  Zustand und misst daher keine Aufspaltung. Der Leichtlochübergang hingegen bedient sich auch des  $m_e = -1/2$  Zustandes und daher ergibt sich eine Aufspaltung dieses Überganges.

In der Messung des letzten Kapitels ist die Aufspaltung der Resonanz durch die starken Modulationen im Spektrum nicht klar zu erkennen. Daher wurde in einem weiteren Experiment der Anregeimpuls zu höheren Energien, in das Kontinuum des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges verstimmt. Dies führt zu einer erhöhten Anzahl angeregter Ladungsträger, was sich durch ein stärkeres Ausbleichen der Absorption, sowie durch eine Verkürzung der Dephasierungszeit bemerkbar macht. Da als Quelle für diese Modulationen nichtlineare Vielteilcheneffekte vermutet werden, besteht die Möglichkeit, dass sich die Wahl dieser Anregungsbedingungen stärker dämpfend auf die Modulationen auswirkt als auf die Aufspaltung.

Abbildung 3.22 zeigt eine solche Messung bei  $\sigma_+\sigma_+$  Polarisation sowie einer Anregung von 22 meV oberhalb der Bandkante mit  $4,5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>, also einer doppelt so hohen Intensität wie in der Messung aus Abb. 3.19. Die gewählte Flussdichte ist jedoch noch klein genug um die kohärenten Effekte deutlich von der Dynamik angeregter Ladungsträger unterscheiden zu können. Von der generellen Dynamik ist das Ergebnis sehr ähnlich zu dem aus Abbildung 3.19, jedoch sind hier die Modulationen

nen im Kontinuum des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges nur sehr schwach ausgeprägt. Um die Zeitnull ist klar eine Aufspaltung der exzitonsichen Resonanz in drei Linien zu beobachten. Die Separation der Linien beträgt  $\pm 20$  meV zur Zeit der größten Aufspaltung. Für ein Mollow Triplet wird erwartet, dass die zentrale Resonanz eine doppelt so hohe Oszillatorstärke besitzen, da sie aus zwei Übergängen gebildet wird. Die zentrale Linie zeigt in der Tat eine etwas höhere Absorption als die beiden Anderen, das genaue Größenverhältnis ist aber aufgrund der überlagerten Blauverschiebung der Resonanz in Verbindung mit der eintretenden Verbreiterung dieser Resonanz nicht quantitativ bestimmbar. Das Ausbleichen der Absorption nach dem Anregimpuls ist nur leicht höher als im Falle der Messung in Abb.3.19. Auch der Bereich der optischen Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion ist klar zu erkennen. Damit verhält sich die Probe wie es für den Fall einer durch Rabi Oszillationen induzierten Aufspaltung der Energieniveaus zu erwarten ist.

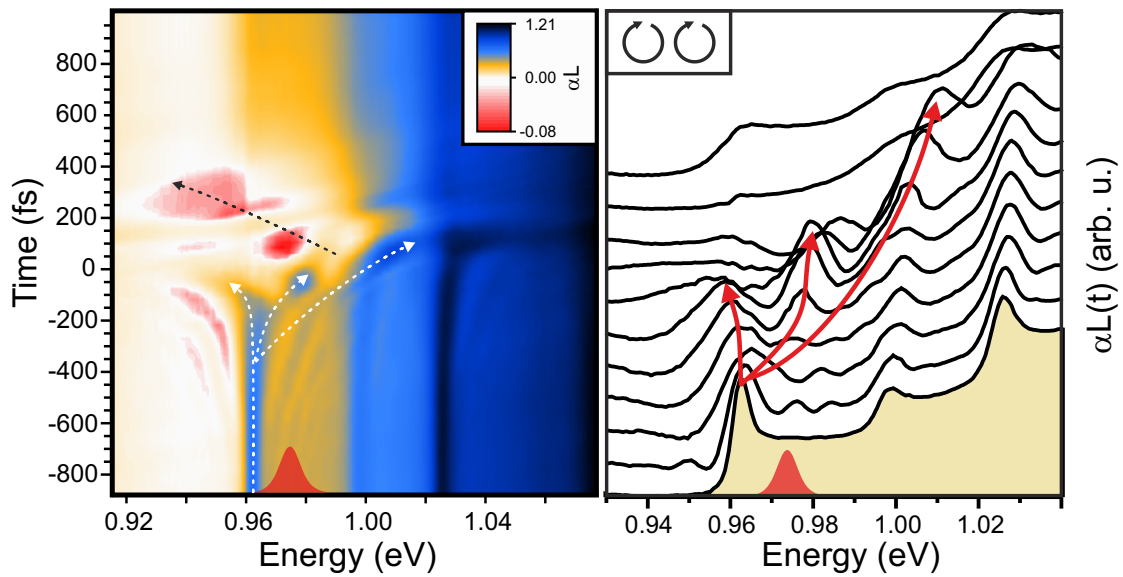


Abbildung 3.22: Wie Abb. 3.19, für eine  $\sigma_+\sigma_+$  Anregung bei 0.976 eV (rote Fläche), mit  $4,5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Der Zeitversatz der Spektren ist (von unten nach oben; in fs): -800, -300, -100, -50, -25, 0, 50, 100, 150, 500, 1000.

Für eine gegenläufig zirkuläre Polarisation wird wie bereits betrachtet, ein anderes Verhalten erwartet. Die Überlegungen aus Abb.3.21 sagen ein bloßes Ausbleichen am Schwerlochzustand, sowie eine Spaltung der Leichtlochresonanz vorher. Abbildung 3.23 stellt die Messungen der beiden Polarisationsgeometrien gegenüber. Wie erwartet zeigt die  $\sigma_+\sigma_-$  Messung keine Aufspaltung der HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz. Hingegen kommt es an der LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz zu einer Aufspaltung in zwei Linien. Analog zur  $\sigma_+\sigma_+$  Messung kann auch hier die Größe der Aufspaltung bestimmt werden. Dies

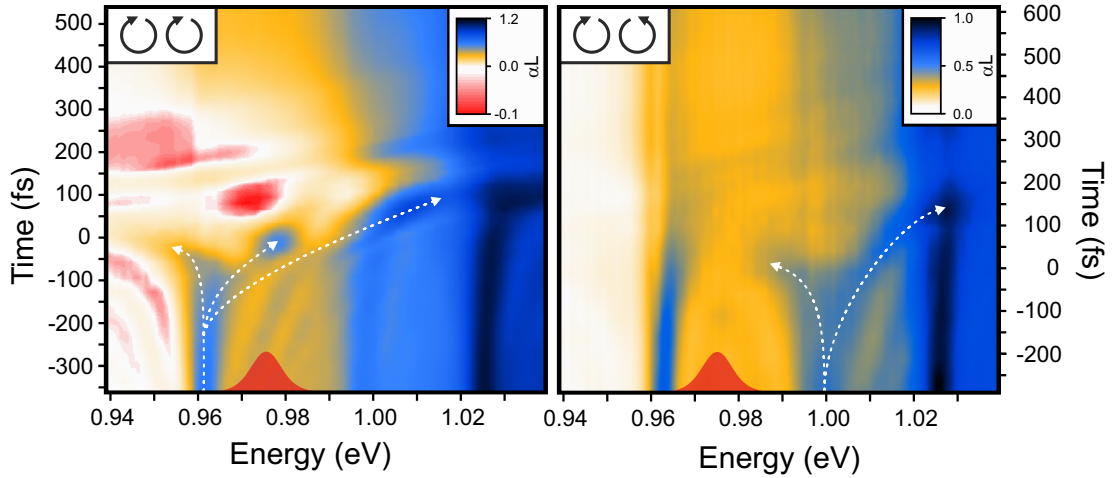


Abbildung 3.23: Abhängigkeit des Ergebnisses aus Abb. 3.22 von der Polarisation des Abfrageimpulses. Die kozyklische Messung (links) zeigt die Ausbildung von Mollow Seitenbanden an der exzitonischen Resonanz des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges. Für den entgegengesetzt zirkulären Fall wird hingegen die Aufspaltung des LH1-c $\Gamma$ 1 Überganges beobachtet, während der Schwerlochübergang nur ein Ausbleichen und eine leichte Blauverschiebung der Resonanz zeigt.

ergibt eine Separation der Linien von  $\approx 20$  meV, was wie erwartet dem energetischen Abstand der Seitenbanden zur zentralen Resonanz im  $\sigma_+\sigma_+$  Fall entspricht. Dies unterstützt die Annahme, dass die beobachteten Effekte auf Rabi Oszillationen des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges zurück zu führen sind. Aber auch hier wäre es wünschenswert, die Messergebnisse mit dem Ergebnis eines mikroskopischen Vielteilchenmodells vergleichen zu können, um kohärente Effekte höherer Ordnung als Quelle ausschließen zu können.

Die hier dargestellten Experimente zeigen klar die Ausbildung einer Aufspaltung der HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz. Wie für ein Mollow Triplet erwartet, zeigt sich bei gleichläufig zirkularer Polarisation von Anrege- und Abfrageimpuls ein Aufspalten der getriebenen Resonanz in drei Linien. Bei gegeläufig zirkularer Polarisation wird hingegen eine Spaltung des Leichtlochüberganges in zwei Linien beobachtet, wie es zu erwarten war. Dieses Verhalten überlagert sich mit der starken Blauverschiebung der Resonanz, sowie mit einer optischen Verstärkung ohne Besetzungsinversion. Dabei konnten die einzelnen Bestandteile durch ihre verschiedenen zeitlichen Verläufe gut voneinander getrennt werden. Eine derartige Überlagerung dieser Effekte ist für Germanium einzigartig und konnte an klassischen direkten Halbleitern wie GaAs bisher noch nicht beobachtet werden.

### Hochenergetische Anregung

In diesem Abschnitt wird das Verhalten des dynamischen Stark-Effektes bei einer höher energetischen Anregung beschrieben. Dazu zeigt Abbildung 3.24 eine Messung bei einer Anregung der Probe im Kontinuum des LH1-c $\Gamma$ 1 Überganges, knapp unterhalb der HH2-c $\Gamma$ 2 Resonanz mit einer Flussdichte von  $4,5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die

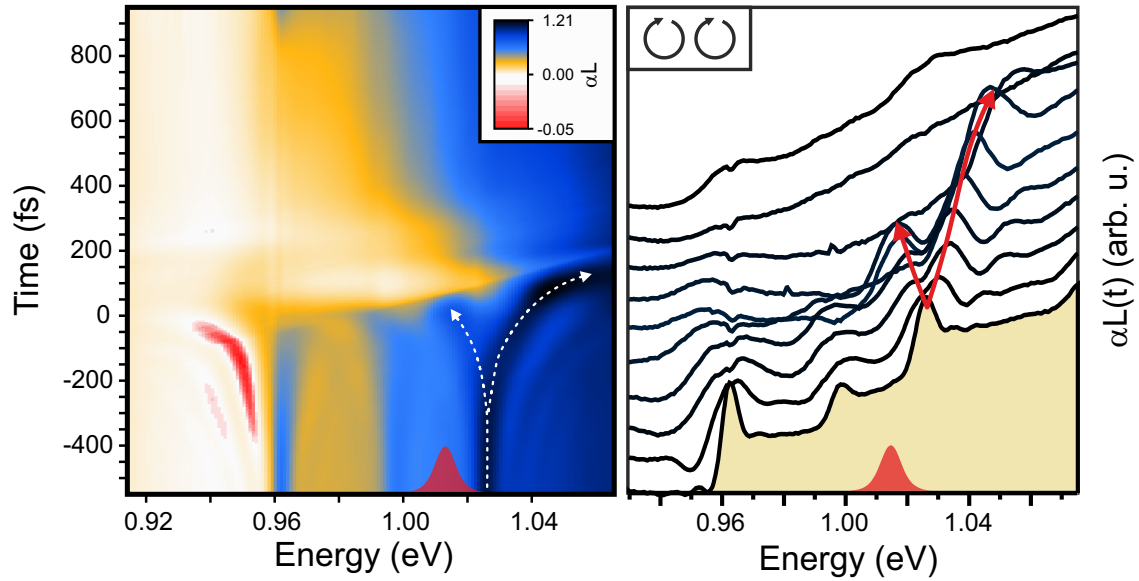


Abbildung 3.24: Wie Abb. 3.22, für eine  $\sigma_+\sigma_-$  Anregung bei 1,016 eV (rote Fläche), mit  $4,5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Der Zeitversatz der Spektren ist (von unten nach oben; in fs): -500, -100, -25, 0, 50, 100, 150, 200, 400, 1000.

Messung zeigt trotz der starken Anregung von Ladungsträgern durch den Anregimpuls eine starke Blauverschiebung der HH2-c $\Gamma$ 2 Resonanz. Außerdem ist eine optische Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion energetisch unterhalb des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges zu beobachten. Ansonsten ist die Dynamik der Zustände unterhalb der Anregungsenergie wie zu erwarten, stark durch die angeregten Ladungsträger bestimmt. Es ist jedoch erstaunlich, dass trotz der wesentlich erhöhten Anzahl der durch Ladungsträger induzierten Dephasierungsprozesse ein dynamischer Stark-Effekt, sowie die Aufspaltung der HH2-c $\Gamma$ 2 Resonanz beobachtet werden kann. Allerdings stellt sich die Frage warum kein Mollow Triplet beobachtet wird. Diese Frage kann aber aufgrund der Ankopplung des treibenden elektrischen Feldes an eine Vielzahl von Zuständen und der reichhaltigen Vielteilchendynamik bei einer so hochenergetischen Anregung nicht weiter geklärt werden. Auch die Überlagerung der kohärenten Effekte mit der Ladungsträgerdynamik macht eine theoretische Basis für die weitere Auswertung notwendig.





## 4 Ladungsträgerdynamik

Die zeitliche Entwicklung angeregter Ladungsträger in Halbleitern bestimmt viele der optischen Eigenschaften eines Material. Trotz der kurzen Zeitskalen auf denen diese Prozesse ablaufen, wirken sich diese auch auf die makroskopischen Zeitskalen aus. Beispielsweise bei Halbleiterlasern und Leuchtdioden setzt die Konstruktion von effizienten Lichtquellen zwangsläufig ein tiefes Verständnis der in der Probe ablaufenden Physik voraus. In Halbleitern unterscheiden sich dabei das Elektronische- und das Lochsystem aufgrund ihrer verschiedenen Bandstruktur häufig auch in den Zeitskalen der Dynamik. Im Folgenden wird für Germaniumfilme im besonderen das Lochsystem von Interesse sein. Während die Elektronen nach der Anregung durch Ihre Streuung in die L-Täler nach wenigen hundert fs nur noch indirekt zur optischen Antwort des Materials beitragen, verbleiben die Löcher am  $\Gamma$ -Punkt und dominieren somit die optische Antwort des Systems. Die Arbeit konzentriert sich vornehmlich auf eine temperaturabhängige Vermessung spinpolarisierter Lochverteilungen, sowie das Abkühlverhalten heißer Lochsysteme. Im zweiten Teil werden dann Germaniumepischichten auf ihre optische Verstärkung, und damit auf Eignung als Lasermaterial, untersucht. Dabei wird ins besondere der Einfluss der Dotierung des Materials auf die optische Verstärkung untersucht. Die gezeigten Messungen sind teilweise in Zusammenarbeit mit Ronja Woscholski und Kolja Kolata angefertigt worden. Außerdem wurden einige der Messungen von Sebastian Imhof auf der Grundlage von Halbleiterblochgleichungen modelliert.

### 4.1 Spin-Dynamik und L Streuung

Die Spin-Dynamik in Halbleitern ist ein wichtiges Forschungsgebiet, da dem Spin aufgrund seiner potentiell hohen Kohärenzzeit ein großes Potential als Qubit<sup>1</sup> zur Realisierung von Quantencomputern zugemessen wird[67, 68]. In GaAs werden für

---

<sup>1</sup>Quantenbit

die Spinpolarisation von Elektronensystemen Lebensdauern im Bereich von teilweise weit über 200 ps [69] angegeben. Wesentlich schwerer als die Messung der Elektronenspindynamik ist jedoch die Vermessung des Lochspins. Dies liegt zum Teil in der kurzen Lebensdauer der Lochspins im Vergleich zu den Elektronenspins. Für undotiertes GaAs werden beispielsweise Lochspinlebensdauern von 110 fs angegeben [70]. Diese vergleichsweise kurzen Zeiten können durch die starke Spin-Bahn-Kopplung der Lochzustände erklärt werden, welche ein starkes  $\mathbf{k}$ -abhängiges Vermischen der Spin- und der Bahndrehimpulseigenzustände zur Folge haben [71]. Durch diese Vermischung können Streuprozesse leicht sowohl den Spin als auch den Bahndrehimpuls des Teilchens ändern [72, 73]. Dies gilt zwar auch für die Eigenzustände der Elektronen, aber aufgrund der p-artigen Wellenfunktionen der Löcher hat es auf diese einen wesentlich größeren Einfluss. Das Vermessen der Lochspinpolarisation ist in klassischen Halbleitern wie GaAs durch die Anwesenheit der Elektronen sehr kompliziert. Aufgrund ihrer langen Spinlebensdauer dominieren sie in vielen Versuchen das gemessene Signal. Dies führt bei der Auswertung der polarisationsabhängigen Dynamik eines spinpolarisiert angeregten Materials dazu, dass sehr komplexe Modelle zur Beschreibung notwendig werden [69].

Auch in Germanium konnten in diesem Bereich erste Schritte gemacht werden. So wurde beispielsweise ein Bauelement vorgestellt, welches elektrisch induzierte Spinströme realisiert [74]. Dieses zeigte Elektronenspin Lebenszeiten von 0,3 ns bis 1 ns. Germanium bietet sich zudem aufgrund seiner schnellen Elektronenstreuung zum

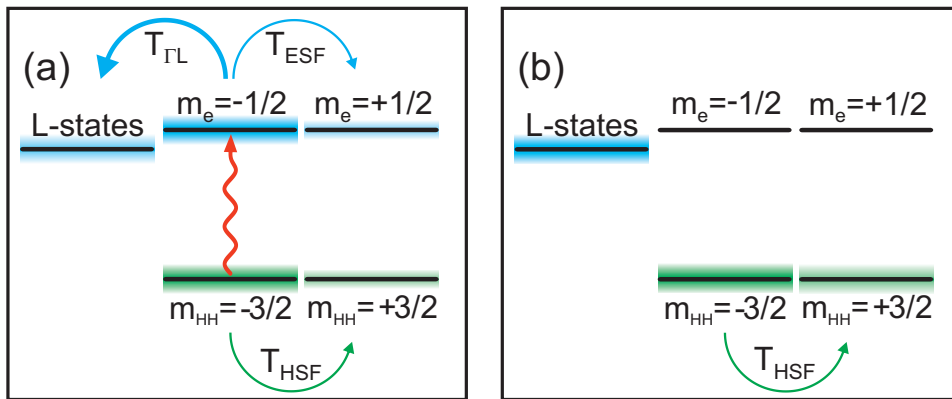


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Ladungsträgerdynamik nach einer schwachen resonanten Anregung. Nach der Anregung mit einem  $\sigma_+$  polarisierten Anreizimpuls befinden die Ladungsträger wie in **a** gezeigt zunächst noch größtenteils im  $m_e = -1/2$  und  $m_{hh} = -3/2$  Zustand. Die Elektronen und Löcher können durch Streuung ihren Spin ändern und so in das jeweils andere Spin-Subband gelangen. Für die Elektronen wird die Dynamik jedoch durch die hocheffiziente Streuung zum L-Punkt dominiert. Das Gleichgewicht zwischen den beiden Lochspinsubbändern ist jedoch auch nach dem Wegstreuen der Elektronen noch nicht erreicht **b**.

den L-Tälern sehr gut als ein Referenzsystem für die Erforschung der Lochspindynamik an. Abbildung 4.1 zeigt das Modell für die Dynamik bei resonanter Anregung zum Schwerlochübergang. Neben der Spinumklappprozesse der Elektronen und Löcher, spielt also nur noch die Zwischentalstreuung der Elektronen eine Rolle. Für die  $\Gamma$  zu L Streuzeit wird in der Literatur eine Zeitkonstante von  $T_{\Gamma L}=185$  fs angegeben [75]. Eine 2010 veröffentlichte Studie über die Lochspinlebenszeit in Germanium kommt zu einem Ergebnis von  $T_{HSF} \approx 200$  fs bei einer Temperatur von 300 K [76, 77].

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Spinstreuzeit in verspannten Germaniumquantenfilmen in Abhängigkeit der Proben temperatur bestimmt werden. Dazu wurden in Anrege-Abfrage Experimenten zeitlich aufgelöst die Anisotropie in der Absorption von zirkular polarisiertem Licht, mit verschiedener Drehrichtung in der angeregten Probe bestimmt. Die Probe wurde dazu resonant zum HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang mit möglichst niedrigen Photonenflussdichten angeregt, um den Einfluss von Interbandstreuungen und der Abkühlung des Ladungsträgersystems auf das Experiment zu minimieren.

Dies ermöglicht eine bessere Präparation der spinpolarisierten Ladungsträgerverteilung im Vergleich zu denen in Ref. [76] veröffentlichten Experimenten. Dort wurde die Probe hochenergetisch ins Band angeregt, was zu einer breiteren (heißeren) Verteilung der Löcher im  $\mathbf{k}$ -Raum führt. Dies wiederum hat ein stärkeres Vermischen der Spin- und Bahndrehimpulseigenzuständen zur Folge, was letztendlich zu der erhöhten Wahrscheinlichkeit für Spinumklappprozesse führt. Die so gemessenen Spinrelaxationszeiten sind somit als Effektivwerte zu sehen, die stark von den experimentellen Bedingungen abhängen. Die hier gewonnenen Werte haben den Vorteil, dass sie durch die resonante Anregung der Ladungsträger weniger stark von Abkühlungseffekten beeinflusst werden und in soweit näher an die fundamentale Streuzeit herankommen. Jedoch muss auch hier beachtet werden, dass der in Abschnitt 4.2.1 diskutierte Aufheizprozess des Lochsystems einen Einfluss auf die Messungen haben wird. Durch die Verwendung möglichst kleiner Dichten kann der Einfluss jedoch minimiert werden.

Auch die Wahl des Materials wirkt sich auf die Streuzeit zwischen den beiden Spinsystemen aus. In der verwendeten verspannten Germaniumprobe kommt es zu einer Aufhebung der Entartung von Leicht- und Schwerlochband bei  $\mathbf{k}=0$ . Die energetische Separation der beiden Bänder um  $\mathbf{k} = 0$  erniedrigt zusätzlich die Vermischung der Eigenzustände und reduziert somit die Anzahl der Spin verändernden Streukanäle. Für die hier gezeigten Messungen werden demnach größere Spinzerfallszeiten erwartet als in Ref. [76] beschrieben.

Die Streuzeit der Elektronen vom  $\Gamma$ - zum L-Punkt,  $T_{\Gamma L}$ , ist ein wichtiger Parameter für die Bestimmung der Lochspinkohärenzzeit, daher wird diese zunächst für die verwendete Probe #8009 ermittelt. Die Probe wird dazu bei 7 K resonant zum HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang mit einer Photonenflussdichte von  $3,7 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Wird eine  $\sigma_+$  linear Polarisationsgeometrie gewählt, ergibt sich eine Situation wie schematisch in Abb. 4.2a dargestellt. Da der linear polarisierte Abfrageimpuls beide Spinsubbänder gleichermaßen abfragt, fallen Spinumklappprozesse bei dieser Messung nicht ins Gewicht. Wertet man die Änderung der Transmission an der LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz aus, kann zudem der Einfluss der Lochpopulation auf die Messung ausgeschaltet werden. Für das vermessene elektronische System ist die Änderung der Absorption also primär durch das Streuen der Elektronen in die L-Täler bestimmt. Allerdings haben die Elektronen durch die Coulombwechselwirkungsterme sowie den Energierenormalisierungsterm noch Einfluss auf die Absorptionseigenschaften der Probe. Daher kommt es auch nach dem Wegstreuen der Elektronen zu einer verbleibenden Rotverschiebung des HH1-c $\Gamma$ 1 Zustandes, was effektiv zu einer Abnahme der Oszillatorstärke bei der Energie des ungestörten Überganges führt. Neben dieser Verschiebung, kann man auch noch ein zusätzliches Ausbleichen der exzitonischen Resonanz beobachten. Der Anteil der Rotverschiebung kann durch eine energetische Integration des differenziellen Signals beseitigt werden, für das Coulomb-induzierte Ausbleichen der Resonanz ist dies aber natürlich nicht möglich. Daher wird zwangsläufig ein Ausbleichen der HH1-c $\Gamma$ 1 und der LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz gemessen. Da dieser Effekt aber viel kleiner ist als das Ausbleichen durch die Elektronenbesetzung, kann er an dieser Stelle als konstant angenommen werden. Aufgrund der hohen energetischen Differenz zwischen den Leitungsbändern am  $\Gamma$ - und L-Punkt kann die Rückstreuung der Elektronen zum  $\Gamma$ -Punkt vernachlässigt werden. Damit kann hier von einer konstanten Streurrate ausgegangen werden. Demnach ist dann die zeitliche Ableitung der Elektronenbesetzung am  $\Gamma$ -Punkt  $n_{e,\Gamma}$  gegeben durch  $\partial_t n_{e,\Gamma} = n_{e,\Gamma}/T_{\Gamma L}$ . Da  $\Delta\alpha L \propto n_{e,\Gamma}$ , führt dies zu einem exponentiellen Zerfall des gemessenen  $\Delta\alpha L(t)$ -Signals:

$$\Delta\alpha L(t) \propto e^{-(t-t_0)/T_{\Gamma L}} + const.$$

Durch ein Anpassen dieser Gleichung an die Messung kann, wie in Abb. 4.2b gezeigt, für die Streuzeit ein Wert von  $T_{\Gamma L} = 235 \pm 25$  fs ermittelt werden. Aufgrund der unbekannten Dynamik des Ausbleichsignals, ist diese Auswertung jedoch mit einem Fehler belastet.

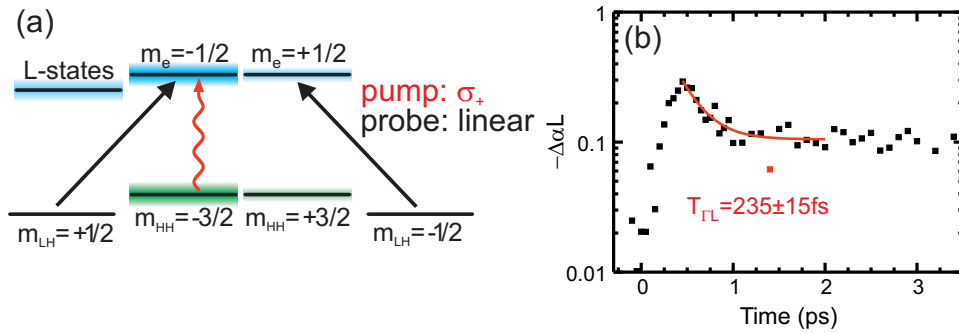


Abbildung 4.2: Die Elektronenstreuzeit zu den L-Tälern kann mit einer Anrege-Abfrage Messung, resonant zum HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang, mit zirkular-linear Polarisationsgeometrie vermessen werden. Das differenzielle Absorptionssignal an der Leichtlochresonanz zeigt dann den Unterschied zwischen den beiden Spinsubbändern, wie in Abb. **a** skizziert ist. Abb. **b** zeigt eine Messung in dieser Art an der Probe #8009 bei 7 K und einer Photonenflussdichte von  $3,7 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>.

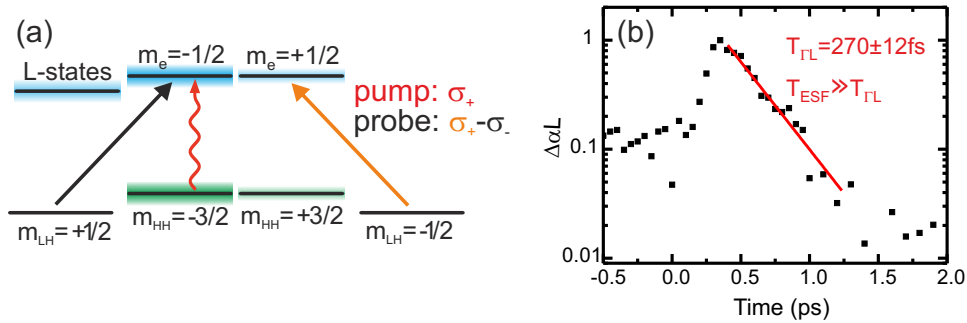


Abbildung 4.3: Eine weitere Möglichkeit die Elektronenstreuzeit zum L-Punkt zu bestimmen ist die Messung aus Abb. 4.2 mit gleichläufig- und gegenläufig zirkularer Polarisation zu wiederholen. Die Differenz der beiden Messungen enthält wie in **a** skizziert die unterschiedliche Besetzung der beiden Spinsubbänder. Teil **b** zeigt eine solche Messung für die gleichen Bedingungen wie in Abb. 4.2.

Um das Problem dieser Bestimmungsmethode zu umgehen, kann die Streuzeit  $T_{GL}$  auch noch über eine andere Methode gewonnen werden. Dazu wird die Probe wie in der vorherigen Messung mit  $\sigma_+$  polarisiertem Licht angeregt und dann nacheinander mit  $\sigma_+$  und  $\sigma_-$  polarisiertem Licht abgefragt, wie in Abb. 4.3a skizziert. Bildet man die Differenz zwischen diesen beiden Messungen ( $\sigma_- - \sigma_+$ ) und wertet diese an der LH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz aus, erhält man ein positives Signal, was verschwindet, wenn alle Elektronen vom  $\Gamma$ -Punkt weggestreut sind. Diese Messmethode hat den Vorteil, dass im Gegensatz zur linearen Abfrage die störenden Ausbleich- und Bandkantenrenormalisierung-Prozesse in beiden Messungen auftauchen und somit bei der Differenzbildung wegfallen. Jedoch ist das so gewonnen Signal auch sensitiv auf Spinumklappprozesse des Elektronensystems. Die zeitliche Entwicklung der Elektronenbesetzung des erzeugten Spinsubsystemes ( $n_{m_e=-1/2,\Gamma}$ ) ist demnach gegeben

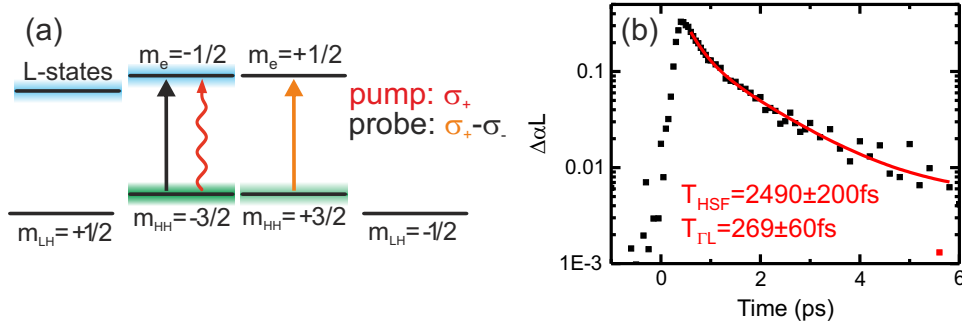


Abbildung 4.4: Die Dynamik des Spinumklappprozesses der Lochzustände kann wie **a** verdeutlicht durch eine Messung mit gegenläufig zirkularer Polarisation vermessen werden. Dazu muss, wie in **b** gezeigt, die Messung aus Abb. 4.3 an der Schwerlochresonanz ausgewertet werden.

durch

$$\partial_t n_{m_e=-1/2,\Gamma} = n_{m_e=-1/2,\Gamma}/T_{\Gamma L} \times (n_{m_e=-1/2,\Gamma} - n_{m_e=+1/2,\Gamma})/T_{ESF}.$$

Dabei ist  $T_{ESF}$  die Zeitkonstante für die Streuung zwischen den beiden Elektronenspinneiveaus. Die Messung kann nicht zwischen den beiden Zerfällen des Signals unterscheiden, da aber  $T_{\Gamma L} \ll T_{ESF}$  haben die elektronischen Spinumkehrprozesse nur einen geringen Einfluss auf die Abnahme des Signals und können somit vernachlässigt werden. Unter dieser Näherung ergibt sich für die beobachtete differenzielle Absorption

$$\Delta\alpha L_{\sigma_- - \sigma_+}(t) \propto e^{-(t-t_0)/T_{\Gamma L}}.$$

Die Messung in Abb. 4.3b zeigt das Ergebniss zusammen mit einer monoexponentiellen Anpassung. Diese ergibt eine Streuzeit von  $T_{\Gamma L} = 270 \pm 12 \text{ fs}$ . Die Ergebnisse der beiden Methoden stimmen also gut überein, zumal man bedenken muss, dass im ersten Fall wegen der vernachlässigten Zeitentwicklung des Ausbleichens auch ein kleinerer Wert für die Streuung erwartet wird.

Mithilfe der so gewonnenen Informationen über die Interbandsteuerung kann nun die Zeitkonstante für die Streuung zwischen den beiden Spinsubbändern bestimmt werden. Dazu wird die Messung aus Abb. 4.3 an der HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz ausgewertet, wie in Abbildung 4.4 gezeigt. Dieses Signal enthält nun sowohl die Streuung der Elektronen in Richtung L-Punkt, wie auch die Spinpolarisation der Lochzustände. Für das

Lochsystem gilt dann:

$$\partial_t n_{m_{hh}=-3/2} \propto (n_{m_{hh}=-3/2} - n_{m_{hh}=+3/2})/T_{HSF}.$$

Da der Anteil des elektronischen Systems und des Lochsystems unabhängig von einander sind, überlagern sich die beiden Prozesse und ergeben im zeitlichen Verlauf ein biexponentielles Verhalten. Nutzt man dabei, dass  $n_0 = n_{m_{hh}=-3/2} + n_{m_{hh}=+3/2}$  folgt dann für das gemessene Signal

$$\Delta\alpha_{\sigma_- - \sigma_+}(t) \propto (1 - A_0)e^{-(t-t_0)/T_{\Gamma L}} + A_0e^{-(t-t_0)/2T_{HSF}}.$$

Der eine Term enthält die vorher bestimmte Elektronen Streuzeit  $T_{\Gamma L}$  und der andere die gesuchte Streuzeit zwischen den beiden Lochspinzuständen  $T_{HSF}$ . Aufgrund der Hin- und Rückstreuung der Löcher von dem  $m_{hh} = +3/2$  Zustand ist  $T_{HSF}$  gerade doppelt so groß, wie die in der Messung beobachtete Abfallzeit des Signals. In der Tat zeigt das zeitliche Verhalten des differenziellen Signals in Abb. 4.4b einen biexponentiellen Verlauf. Zur Ermittlung von  $T_{HSF}$  wurde zunächst die biexponentielle Funktion mit dem vorher bestimmten  $T_{\Gamma L}$  an die Kurve angepasst. Anschließend wurde zur Kontrolle unter Festhalten von  $T_{HSF}$  das vorher festgehaltene  $T_{\Gamma L}$  optimiert, was wie zu erwarten im Rahmen der Ungenauigkeit zu keiner Veränderung der Größe führte. Daraus konnte bei einer Probertemperatur von 7 K ein  $T_{HSF}$  von  $2490 \pm 200$  fs bestimmt werden.

Als nächstes soll die Temperaturabhängigkeit der beiden Größen  $T_{HSF}$  und  $T_{\Gamma L}$  bestimmt werden. Dazu wird die oben gezeigte Methode für ausgewählte Temperaturen zwischen 7 K und 250 K wiederholt. Für jede Temperatur wird die Probe resonant zum HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang mit einer Photonenflussdichte von  $3,7 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Für  $T_{HSF}$  ist ein kontinuierlicher Abfall von 2490 fs bei 7 K hin zu 1094 fs bei 250 K zu beobachten. Für Raumtemperatur ist die Zerfallszeit der Spinpolarisation also etwa ein Faktor vier höher als in den Messungen von Smirl et al. [77]. Aufgrund der oben genannten Gründe stellt dies aber keinen Widerspruch dar.

Für  $T_{\Gamma L}$  erwartet man eine schwache Abhängigkeit bis die thermische Energie in die Nähe der Energie des niedrigsten Phononenbandes am L-Punkt kommt. Für Germanium ist dies das TA-Phonon Band, welches am L-Punkt eine Energie von ca. 9 meV aufweist [78]. Dies entspricht einer Temperatur von knapp über 100 K. In der Tat bleibt

die  $T_{\Gamma L}$  bis zu dieser Temperatur im Rahmen der Messungenauigkeit konstant. Danach ist eine Abnahme von 270 fs bei 7 K auf 192 fs bei 250 K zu beobachten.

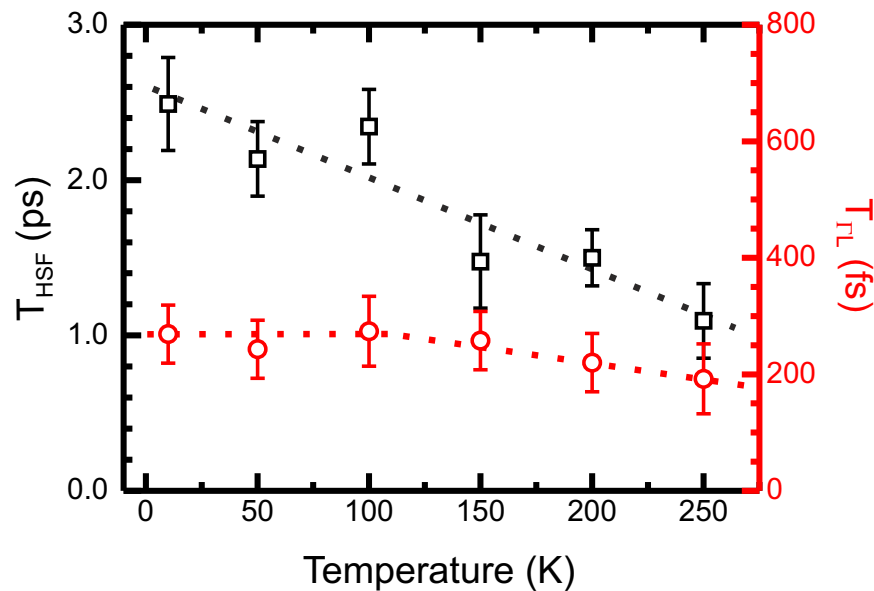


Abbildung 4.5: Abhängigkeit der elektronischen  $\Gamma$ -L Streuzeit  $T_{\Gamma L}$ , sowie der Umklappzeit des Lochspins  $T_{HSF}$  der Probe #8009 von der Temperatur.  $E_{TA}(L)$  zeigt die Temperatur, an der die thermische Energie den Wert des TA-Phonons am L-Punkt erreicht.

Germanium als indirekter Halbleiter ermöglicht also im Gegensatz direkten Halbleitern[69] eine einfache Trennung zwischen der Dynamik von Elektronen- und Lochsystem. In verspannten Germaniumstrukturen kann dabei durch die Aufspaltung der Leichtloch-Schwerloch Entartung sogar zwischen der Streuung der Elektronen vom  $\Gamma$ - ins L-Tal und der Relaxation der Spinpolarisation unterschieden werden. Durch die Wahl dieses Materialsystems in Verbindung mit einer resonanten Anregung, konnten so Streuzeiten zwischen den beiden Lochspinniveaus von bis zu  $T_{HSF}=2490$  fs beobachtet werden, damit liegt sie einen Faktor vier über den bisher veröffentlichten Werten[77]. Außerdem konnte die Temperaturabhängigkeit, sowohl der elektronischen Interbandstreuung, als auch der Spin Streuzeit in einem Temperaturbereich von 7 K bis 250 K vermessen werden. Diese Ergebnisse zeigen das große Potential von diesem Materialsystem, zur Untersuchung der Lochspindynamik. Dieses ist ein wichtiger Punkt auf dem Weg zu möglicherweise neuartigen Anwendungen in der Spintronik.



## 4.2 Abkühlungsdynamik des Lochsystems

Nach der optischen Anregung einer Germanium Quantenfilm Probe läuft die Dynamik der angeregten Ladungsträger auf verschiedenen Zeitskalen ab. Das Verhalten der Probe #8009 ist in Abbildung 4.6 gezeigt. Direkt nach der Anregung streuen die Elektronen in wenigen hundert fs, wie im vorherigen Kapitel betrachtet, zu den L-Punkten und haben damit keinen direkten Einfluss mehr auf die optischen Eigenschaften der  $\Gamma$ -Punkt Übergänge. Neben der Dynamik auf der fs-Zeitskala weist die Antwort der Probe jedoch auch noch den Aufbau eines starken Ausbleichens der  $\Gamma$ -Tal Übergänge im Bereich von 100 ps auf. Dieser wird dem Lochsystem zugesprochen. Nach dem Aufbau dieses Signals bildet sich in der Probe ein Quasigleichgewicht aus, welches während des höchsten messbaren Zeitversatzes zwischen Anrege- und Abfragestrahl (11 ns) nur eine sehr geringe Dynamik zeigt. Die Vermessung der Photolumineszenz in diesem Materialsystem deutet jedoch darauf hin, dass die Dynamik in den L-Tälern noch nicht abgeschlossen ist [79], dieses hat jedoch keinen signifikanten Einfluss auf die direkten Übergänge.

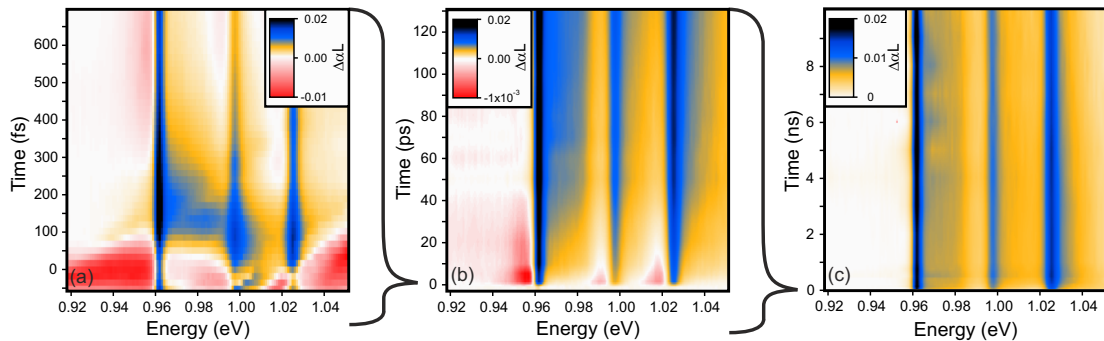


Abbildung 4.6: 2D-Falschfarbendarstellung der differentiellen Absorption der Probe #8009 bei einer Kristalltemperatur von 7 K in Abhängigkeit von der Zeit sowie der Photonenenergie. Die Probe wurde bei 0,97 eV mit einer Flussdichte von  $5,5 \times 10^{16}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Die Ladungsträgerdynamik lässt sich in drei Bereiche aufteilen: Die Elektronendynamik **a**, die Lochdynamik **b** sowie die Rekombination der Ladungsträger, die auf den höchsten messbaren Zeiten ein Quasi-Gleichgewicht ausbildet **c**.

Der Aufbau des Ausbleichsignals kann zweifelsfrei den Lochzuständen zugeschrieben werden, da die Elektronen nach der Streuung in die L-Täler kein Ausbleichen der Kontinuumszustände im  $\Gamma$ -Tal mehr hervorrufen.

Die genaue Kenntnis der Abkühlungsdynamik ist von entscheidender Wichtigkeit, um die Prozesse bei der Ausbildung der optischen Verstärkung für einen potentiellen Laserbetrieb des Materials genau verstehen und damit optimieren zu können. Dieses Ka-

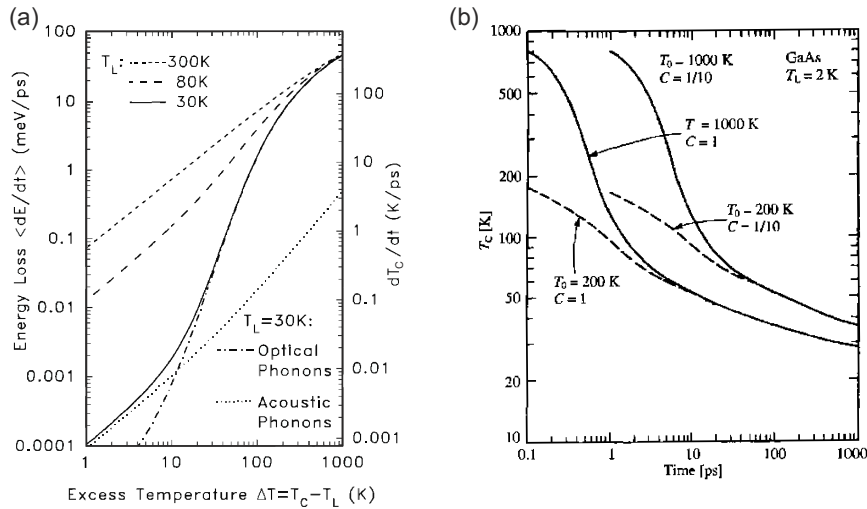


Abbildung 4.7: **a** zeigt die Energieverlustrate heißer Ladungsträger in p-dotiertem Germanium bei verschiedenen Temperaturen als Funktion des Temperaturüberschusses zum Kristall. Für eine Kristalltemperatur von 30 K ist außerdem der Anteil der akustischen und der optischen Phononen an der Verlustrate dargestellt. (aus Ref. [82]). In Abbildung **b** ist das zeitliche Verhalten der Temperatur eines heißen Ladungsträgersystems in GaAs dargestellt. (aus Ref. [83])

pitel wird sich mit der Dynamik des Lochsystems beschäftigen. Im Zentrum stehen dabei die Ermittlung der Abkühlzeiten heißer Ladungsträgerverteilungen.

#### 4.2.1 Abkühlung heißer Ladungsträger

Die im Experiment beobachtete Zeitskala in der Dynamik der Ausbleichsignals ist im Bereich einiger hundert ps. Diese Zeit lässt Abkühlungsprozesse der Ladungsträger auf Gittertemperatur als treibenden Prozess vermuten. In der Tat zeigen experimentelle und theoretische Betrachtungen der Lochabkühlung in Germanium eine Dynamik auf dieser Zeitskala [80, 81].

Im heißen Ladungsträgersystem führt die Streuung der Ladungsträger an optischen Phononen zunächst zu einer effektiven Kühlung. Dabei tragen LO und TO Phononen in Germanium dabei etwa gleichstark bei [84]. Da die optischen Phononenbänder erst bei höheren Energien beginnen, besitzt die Ladungsträgerverteilung ab einer bestimmten Temperatur nicht mehr genügend Energie, um effizient optische Phononen zu emittieren. In Germanium sind die optischen Phononenbänder am  $\Gamma$ -Punkt bei einer Energie von 38 meV zu finden (vergl. Abb. 4.8), was einer Ladungstemperatur von  $\approx 410$  K entspricht. Unter dieser Temperatur wird der Beitrag der akustischen Phononen immer dominanter. In GaAs kommt es zusätzlich aufgrund der  $1/|\mathbf{k}|$  Abhängigkeit

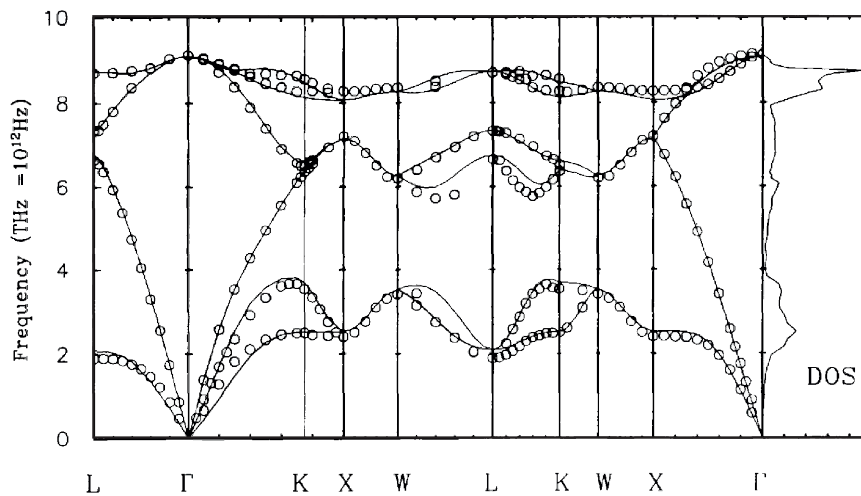


Abbildung 4.8: Verlauf der Phononendispersion für Germanium in ausgewählte Richtungen hoher Symmetrie. Der rechte Teil der Abbildung zeigt die sich daraus ergebene Phononen-Zustandsdichte. (aus Ref. [85])

des Phonon-Matrixelementes der Fröhlich-Wechselwirkung zu einer hohen Besetzung von optischen Phononen mit kleinen  $|\mathbf{k}|$  [86, 87]. Dadurch kommt es zur Ausbildung eines Phononenbades, welches durch Reabsorption von Phononen mit dem Ladungsträgern wechselwirkt. Dies führt zu einer Verlangsamung der anfänglich schnellen Abkühlung, bei hohen Anfangstemperaturen, sowie hohen Ladungsträgerbesetzungen kann es gar zur Ausbildung eines Gleichgewichts zwischen den Ladungsträgern und dem Phononenbad kommen [80]. Daher übernehmen die akkustischen Phononen im weiteren den maßgeblichen Beitrag an der Kühlung des Ladungsträgersystems [88]. Für die weitere Abkühlung ist dabei auch die Lebenszeit der LO und TO Phononen entscheidend, welche in akkustische Phononen zerfallen. Germanium als unpolare Halbleiter weist jedoch keine Fröhlich-Wechselwirkung auf und die Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung muss daher über die Deformationpotentialstreuung geschehen. In erster Ordnung weist hier das Phonon-Matrixelement keine Abhängigkeit der Streuung von  $|\mathbf{k}|$  auf. Daher würde man a priori keine Ausbildung einer Phononenverteilung außerhalb des thermischen Gleichgewichtes<sup>2</sup> erwarten. Dennoch kommt es durch Energie und Impulserhaltung der Streuprozesse zu einem schmalen Bereich von  $|\mathbf{k}|$  Werten, in denen die heißen Ladungsträger ihre Energie an das Kristallgitter abgeben können [89]. Die sich dadurch ausbildende nichtgleichgewichtige Phononverteilung führt wie auch im Falle von GaAs zu einer Abnahme der anfänglich schnellen Abkühlung. Die Lebenszeit der LO und TO Phononen betragen in Germanium (bei

<sup>2</sup>Da Phononen Bosonen sind, entspricht ihre Besetzung im Gleichgewichtszustand einer Bose-Einstein Verteilung.

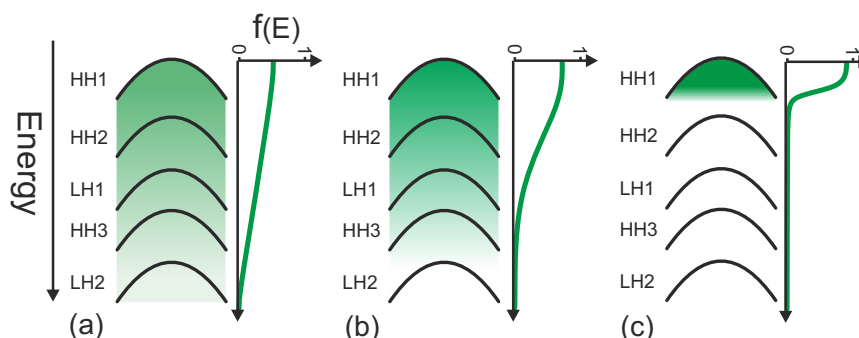


Abbildung 4.9: Besetzungswahrscheinlichkeit der Löcher in Abhängigkeit der Energie für verschiedene Temperaturen. Bei heißen Ladungsträgern **a** erstreckt sich die Besetzung über die verschiedenen Leicht- und Schwerlochzustände. Mit sinkender Temperatur der Ladungsträger **b** nimmt die Besetzung der höheren Zustände kontinuierlich ab, bis nur noch der erste Schwerlochzustand **c** besetzt ist.

77 K)  $8 \pm 1$  ps [84]. Dies führt zusammen mit der Aktivierungsenergie der optischen Phononen auch zu einer Dominanz der akustischen Phononen bei niedrigem Temperaturüberschuss der Ladungsträger zum Kristallgitter [82] (vergl. Abbildung 4.7).

Die Verteilung einer thermischen Lochverteilung kann durch das Produkt der Zustandsdichte mit der Besetzungswahrscheinlichkeit  $f(E)$  beschrieben werden. Für die fermionischen Löcher ist  $f(E)$  durch eine Fermi-Dirak-Verteilung gegeben. Die energetische Lage der in der linearen Absorption beobachteten Übergänge ergibt sich aus der Energiedifferenz zwischen den Elektronen- und den Lochzuständen. So verwundert es nicht, dass die Energie der Lochzustände nicht mit der Lage der Übergänge in der linearen Absorption übereinstimmt. In Abb. 4.9 ist die Position der Lochzustände zusammen mit der schematischen Besetzungswahrscheinlichkeit  $f(E)$  für verschiedene Temperaturen der Lochverteilung dargestellt. Bei heißen Lochverteilungen ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit energetisch relativ flach, was zu einer Besetzung von höherenergetischen Zuständen führt. Bei dem Abkühlen der Verteilung sinkt die Besetzung dieser Zustände jedoch stetig. In der Nähe der Gittertemperatur ist der größte Teil der Ladungsträger auf das HH1-Band beschränkt.

### 4.2.2 Experimentelle Ergebnisse

Zur Vermessung der Lochdynamik werden Anrege-Abfrage Experimente mit verschiedenen Photonenflussdichten und Anregungsenergien an der Probe #8009 durchgeführt. Um den Einfluss der Kristallgittertemperatur zu minimieren, werden die Messungen bei einer Probentemperatur von 4 K durchgeführt. Bei der Auswertung ist es

in diesem Falle sinnvoll, die transiente Transmission  $(T+\Delta T)(\omega, t)$  zu betrachten. Die zu  $T(\omega)$  zugehörige absorbtive Größe erhält man durch dessen Subtraktion von eins:  $A(\omega) = (1 - T(\omega))$ . Bei einer Normierung auf die Absorption  $A(\omega)$  der ungestörten Probe hat diese Größe den Vorteil, dass sie linear in der Änderung der Oszillatorstärke ist. Unter der Annahme, dass die Änderung der Oszillatorstärke wesentlich durch die Pauliblockade angeregter Ladungsträger erfolgt, skaliert die so gewonnene Größe auch linear mit der Zahl der angeregten Ladungsträger. Zur Bestimmung von  $\tilde{A}(\omega, t) = 1 - (T + \Delta T)(\omega, t) / A(\omega)$  wird Gleichung 4.1 genutzt. Um den Einfluss der Bandkantenrenormalisierung, sowie der Verbreiterung der exzitonischen Resonanzen zu minimieren werden vor der Bestimmung von  $\tilde{A}(\omega)$  die beiden Größen  $1 - (T + \Delta T)(\omega, t)$  und  $A(\omega)$  über einen energetischen Bereich integriert. Als Integrationsbereich wird wie in Abbildung 4.10 veranschaulicht, das Intervall von einer exzitonischen Resonanz bis zum Beginn der nächsten genutzt:

$$\Sigma \tilde{A}(t) = \frac{\int_{\omega_0}^{\omega_1} 1 - (T + \Delta T)(\omega, t) d\omega}{\int_{\omega_0}^{\omega_1} A(\omega) d\omega} \quad (4.1)$$

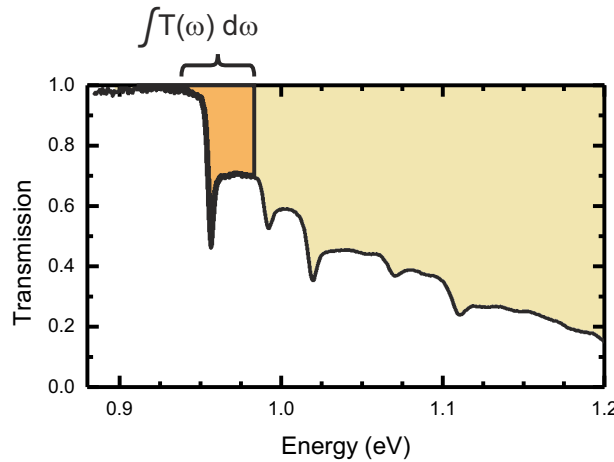


Abbildung 4.10: Zur Auswertung der Lochdynamik wird das Integral der Transmission vom Beginn der exzitonischen Resonanz bis zum Beginn der nächsten betrachtet, hier für den HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang dargestellt.

Für das HH1 Band ist dies eine sehr gute Größe. Bei den höheren Bändern hat man jedoch das intrinsische Problem, dass beispielsweise bei  $\Sigma \tilde{A}_{HH2}(t)$  neben der Änderung des HH2 auch das Kontinuum des HH1 und das des LH1 mit gemessen wird. Wie bereits erwähnt, liegt das LH1 Band zwar energetisch unterhalb des HH2 Bandes (vergl. Abb. 4.9), in der Absorption hingegen ist die Lage der Übergänge in der Reihenfolge getauscht.

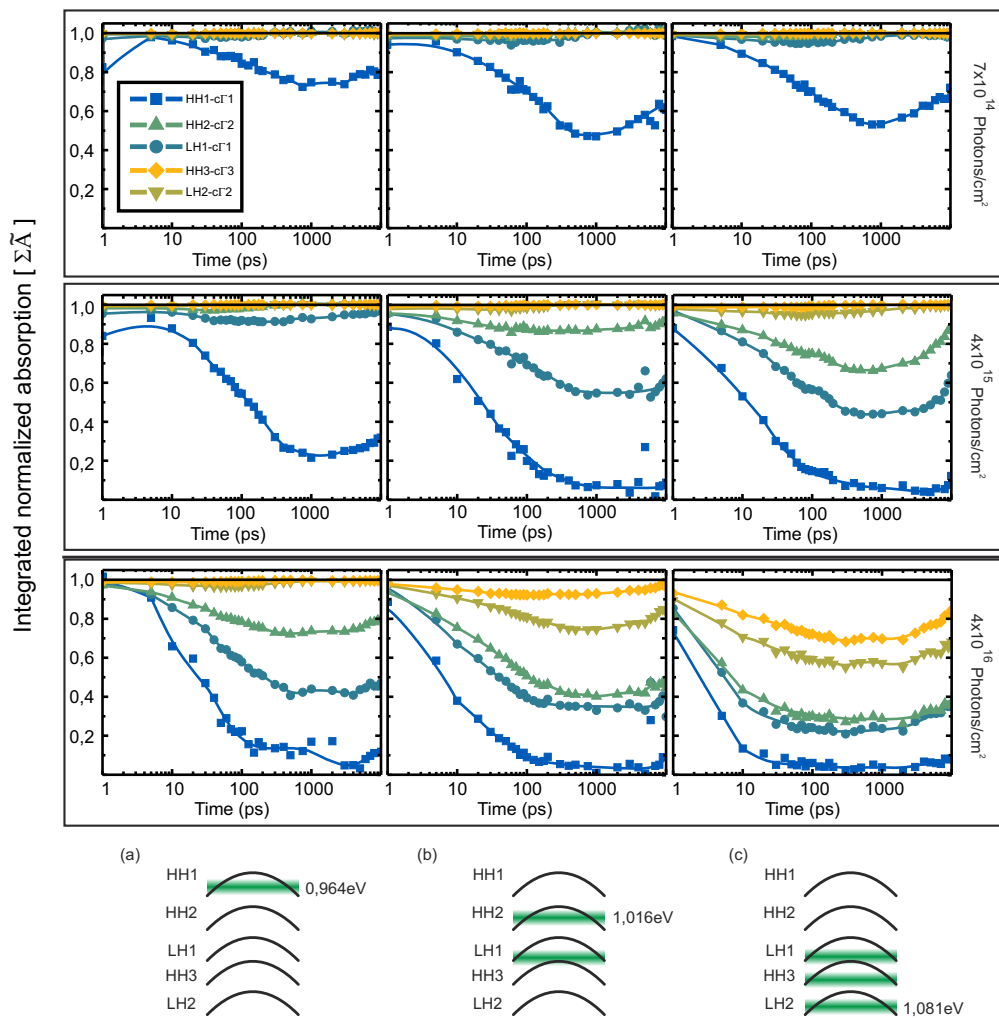


Abbildung 4.11:  $\Sigma\tilde{A}(t)$  der einzelnen Übergänge für Verschiedene Zeiten und Anregungsbedingungen. Jede Zeile entspricht einer festen Photonenflußdichte, die Spalten zeigen unterschiedliche Anregungsenergien wie im unteren Teil verdeutlicht. In jedem Graphen ist das  $\Sigma\tilde{A}(t)$  für die Übergänge der Lochbänder HH1, HH2, LH1, HH3 und LH2 in Abhängigkeit der Zeit gezeigt. In den Spalten **b** und **c** kommt es durch die energetische Lage der Übergänge zur Erzeugung von Löchern mit unterschiedlicher Energie. Diese sind durch die verschiedenen grünen Bereiche angedeutet.

Abbildung 4.11 zeigt eine Übersicht über die Ergebnisse der Experimente unter Verwendung dieser Auswertungsmethode. Die Ergebnisse zeigen das zeitliche Verhalten von  $\Sigma\tilde{A}(t)$  für die einzelnen Lochbändübergänge für verschiedene Flussdichten und Anregungsenergien. In Spalte (a) wurde die Probe bei 0,964 eV, also mit einer Überschussenergie von 10 meV in das Kontinuum des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges angeregt. Aufgrund der unterschiedlichen Krümmungen der Elektronen- und Lochbänder entspricht dies etwa einer Lochüberschussenergie von etwa 1 meV [90]. Bei der niedrigsten Flussdichte von  $7 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> ist nur eine Änderung des HH1-c $\Gamma$ 1 Überganges zu beobachten. Die Ausbleichung des Überganges erreicht ihr Maximum bei 750 ps und führt zu einer Reduktion der Absorption des Überganges auf das 0,7 fache der linearen Absorption. Bei einer Erhöhung der Flussdichte um das fünffache auf  $4 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> führt das zu einer wesentlich stärkeren Ausprägung des Ausbleichens am HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang. Zusätzlich zeigt sich ein Ausbleichen bei der Energie des LH1-c $\Gamma$ 1 Überganges. Da an dem energetisch zwischen HH1 und LH1 liegenden HH2 Band wenn überhaupt nur ein marginales Ausbleichen zu erkennen ist, können sich die für das Signal am LH1 Übergang verantwortlichen Ladungsträger nicht im Leichtlochband befinden. Dies hätte nämlich zwangsläufig auch eine Besetzung des energetisch günstigeren HH2 Bandes zur Folge, was sich an dem zugehörigen Übergang als Ausbleichen zeigen würde. Demnach wird das am LH1-c $\Gamma$ 1 Übergang beobachtete Signal von Löchern aus dem HH1 Kontinuum erzeugt.

Im nächsten Schritt wird die Flussdichte des anregenden Impulses um eine weitere Größenordnung auf  $4 \times 10^{16}$  Photonen/cm<sup>2</sup> erhöht. Neben einer weiteren Ausprägung des Ausbleichens an den HH1-c $\Gamma$ 1 und LH1-c $\Gamma$ 1 Übergängen, kommt es nun auch zu einem deutlichen Ausbleichen am HH2-c $\Gamma$ 2 Übergang. Dies ist überraschend, da bei dieser Anregungsenergie lediglich eine anfängliche Lochüberschussenergie von 1 meV erwartet wird, das HH2 Band jedoch energetisch 25 meV von dem HH1 Band entfernt ist. In der linearen Absorption sind die jeweiligen Übergänge dieser Bänder sogar mehr als 100 meV voneinander entfernt. Auf diese unerwartete Eigenschaft wird im Folgenden noch genauer eingegangen werden, zunächst sollen aber die Resultate für die anderen Übergangsenergien diskutiert werden.

In Abbildung 4.11b wird die Probe ins Kontinuum des HH2-c $\Gamma$ 2 Überganges angeregt. Bei dieser Energie kommt es auch zu einer Anregung von Löchern im Kontinuum des LH1 Bandes, welches sich wie gesagt energetisch im Kontinuum des LH2 Bandes befindet und einen Versatz von etwa 25 meV zu diesem aufweist. Der initiale Energieüberschuss der angeregten Löcher beträgt also bis zu 90 meV. Durch die hö-

here lineare Absorption bei diesen Anregungsbedingungen kommt es zusätzlich zu einer größeren Zahl der angeregten Elektronen-Loch-Paare. Qualitativ zeigen die Messungen ein ähnliches Bild wie im vorherigen Fall. Allerdings ist jetzt schon bei  $4 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> ein Ausbleichen an den LH1-c $\Gamma$ 1 und HH2-c $\Gamma$ 2 Übergängen zu beobachten. Der HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang zeigt bei diesem Photonenfluss fast ein komplettes Ausbleichen der Absorption. Eine weitere Erhöhung der Intensität des anregenden Lichtes auf  $4 \times 10^{16}$  Photonen/cm<sup>2</sup> führt zu einem schnelleren Aufbau des Signales am HH1. Außerdem kommt es jetzt auch zu einem Ausbleichen im Bereich des HH3-c $\Gamma$ 3 und des LH2-c $\Gamma$ 2 Überganges. Diese Übergänge zeigen jedoch einen Rückgang des Signals in den beobachteten 10 ns, was auf eine Nachfütterung der tieferliegenden Zustände schließen lässt, die in dem gleichen Zeitbereich kaum Dynamik zeigen. Eine noch höhere Anregung wie in Spalte (c) gezeigt, erzeugt nochmals mehr Ladungsträger, welche bis zu 128 meV Überschussenergie zur Bandkante angeregt werden. Die höheren Ladungsträgertemperaturen und Dichten führen wiederum zu einem stärkeren Ausbleichen der energetisch höheren Übergänge.

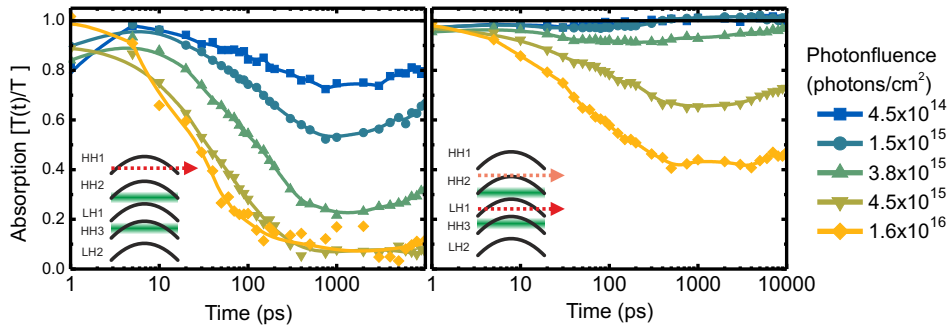


Abbildung 4.12:  $\Sigma\tilde{A}(t)$  in Abhängigkeit der Photonenflussdichte bei einer Anregung im Kontinuum der Probe im Kontinuum des HH2-c $\Gamma$ 2 Überganges. Der linke Teil der Abbildung zeigt die Größe am HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang, der rechte Teil am LH1-c $\Gamma$ 1.

Die Abhängigkeit des Ausbleichsignales von der verwendeten Flussdichte des Anregimpulses wird in der Abbildung 4.12 näher betrachtet. Dazu wurde die Probe im Kontinuum des ersten Leichtlochüberganges bei verschiedenen Flussdichten angeregt. Dieses führt aufgrund der energetischen Lage der optischen Übergänge wiederum zur Erzeugung von Löchern mit zwei verschiedenen Energien, wie in der Abbildung durch die grünen Balken dargestellt. Die Abbildung zeigt die integrierte normierte Absorption  $\Sigma\tilde{A}(t)$  für den HH1-c $\Gamma$ 1 (links) und den HH2-c $\Gamma$ 2 Übergang (rechts). Aus dem gleichen Grund wie bei der Anregung kommt es bei der optischen Abfrage der Probe zu einem Signal, welches immer die Besetzung an zwei Lochenergien gleichzeitig vermisst. Dies wird durch die roten Pfeile verdeutlicht.



Die Flussdichten des Anregeimpulses reichen von 4,5 bis  $1,6 \times 10^{16}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Bei den niedrigen zeigt sich nur bei dem HH1- $\Gamma$ 1 Übergang ein merkliches Ausbleichen. Dies spricht für eine rasche Thermalisierung des Lochsystems. Zudem beobachtet man um 1 ns ein maximales Signal, was in den nächsten 10 ns wieder leicht zurückgeht. Messungen der Lebensdauer der indirekten ( $\Gamma$ -L) Photolumineszenz der Probe legen nahe, dass es sich hierbei um eine Rekombination der Elektronen und Löcher handelt [79].

Mit steigender Zahl der angeregten Ladungsträger steigt das Signal für das HH1 stark an, zudem ist ab einer Flussdichte von  $3,8 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> ein Signal am HH2 zu erkennen, welches hier aber noch innerhalb der Messzeit wieder verschwindet. Dies kann mit der Abkühlung der Ladungsträger, sowie mit einer Relaxation von Elektron-Loch Paaren und ein dadurch erfolgendes Nachfüttern des HH1 Bandes durch die höher liegenden Bänder erklärt werden. Ab einer Flussdichte von  $4,5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> erreicht  $\Sigma \tilde{A}_{HH1}(t)$  annähernd null und eine Erhöhung der Flussdichte führt nicht mehr zu einem höheren Maximalen Ausbleichsignal. Das Ausbilden einer optischen Verstärkung, wie sie sich in direkten Halbleitern zeigen würde wird nicht beobachtet, da unter diesen Anregungsbedingungen die für die optische Inversion notwendigen Elektronen am  $\Gamma$ -Punkt fehlen.

### 4.2.3 Vergleich mit der Theorie

Um die Messungen quantitativ zu erklären, wurde das Verhalten der Germanium Quantenfilme von Sebastian Imhof theoretisch simuliert. Die Rechnungen basieren auf Halbleiterblochgleichungen in Hartree-Fock Näherung. Die Dephasierung wurde durch eine phänomenologische  $T_2$ -Zeit implementiert. Durch Ansetzen von statischen Fermiverteilungen für das Ladungsträgersystem kann damit durch eine Kurvenverlaufsanalyse mit der spektral aufgelösten Transmission die Temperatur des Ladungsträgersystems zu einem gewählten Zeitpunkt bestimmt werden. Abbildungen 4.13 und 4.14 zeigen die Ergebnisse für zwei verschiedene Ladungsträgertemperaturen.

Ein Vergleich der experimentellen Ergebnissen mit den theoretischen Berechnungen untermauert, dass die beobachtete Dynamik ausschließlich von der Abkühlung des Lochsystems bestimmt wird. Betrachtet man zunächst Abbildung 4.13, so fällt besonders die Temperatur von 1400 K 10 ps nach der Anregung auf, was einer mittleren kinetischen Energie der Ladungsträger von 121 meV entspricht. Die Messung

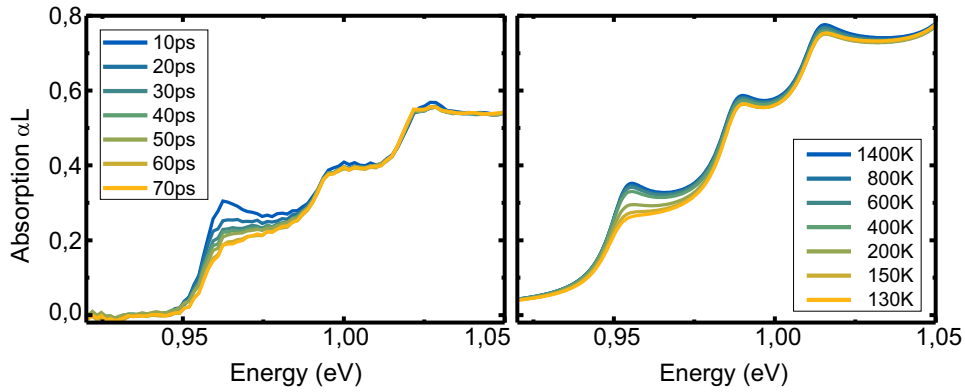


Abbildung 4.13: Gegenüberstellung experimenteller (links) und theoretischer (rechts) Spektren. Im Experiment wurde die Probe bei 0,964 eV mit einer Flussdichte von  $4 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Die theoretischen Kurven zeigen eine Rechnung mit einer Lochdichte von  $1 \times 10^{11}$  Ladungsträger/cm<sup>2</sup> unter verschiedenen Lochtemperaturen.

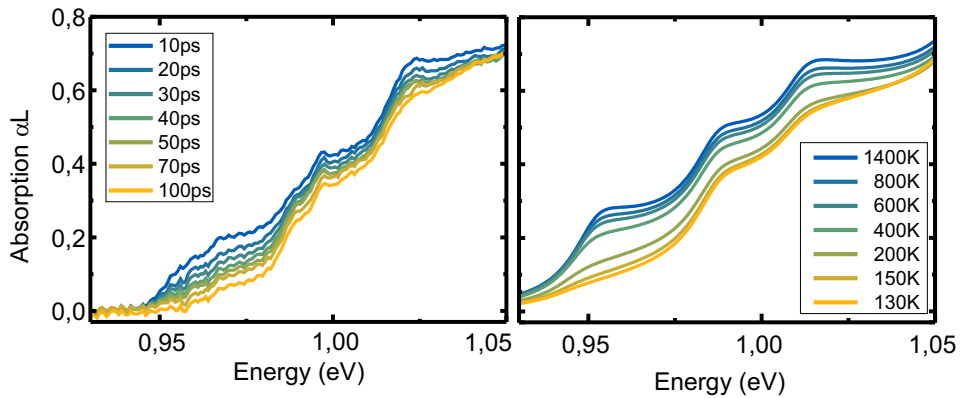


Abbildung 4.14: Gegenüberstellung von experimenteller (links) und theoretischer (rechts) Spektren wie in Abb. 4.13. Hier jedoch für eine Anregung der Probe im Experiment bei 1,016 eV und einer Lochdichte von  $5 \times 10^{11}$  Ladungsträger/cm<sup>2</sup> in den theoretischen Spektren.

entspricht der aus Abbildung 4.11 bei einer Anregung bei 0.964 eV und einer Photonenflussdichte von  $4 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Für die Theorie wurde eine Ladungsträgerdichte von  $1 \times 10^{11}$  Ladungsträger/cm<sup>2</sup> bestimmt. Zur abschätzung kann man annehmen, dass die mittlere Überschussenergie nach  $\Delta E = k_B T$  zur Aufheizung der Landungsträgerverteilung führt. Bei diesen Anregungsbedingungen entspricht  $\Delta E$  im Lochsystem etwa 1 meV, was einer Ladungsträgertemperatur von etwa 12 K entspricht. Das kalte Lochsystem muss also direkt nach der Anregung effizient geheizt werden, um diese hohen Temperaturen zu erreichen. Die thermische Energie des Kristallgitter scheidet als Quelle aus, da die Gittertemperatur in diesem Experiment lediglich 4 K betrug. Damit bleiben nur noch die Elektronen als Quelle für die benötigte Energie zum Aufheizen der Löcher. Zwar werden diese auch nur mit einer

geringen Überschussenergie am  $\Gamma$ -Punkt erzeugt, besitzen jedoch einen Energieüberschuss zum Leitungsbandminimum an den L-Punkten. Die Differenz zwischen den beiden Minima beträgt  $\Delta E_{\Gamma,L} = 136 \text{ meV}$  [22]. Dieser Energieüberschuss passt hervorragend mit der mittleren Temperatur der Löcher von  $121 \text{ meV}$  überein. Allerdings setzt dies eine starke Kopplung der beiden Ladungsträger voraus.

Neben der Messung aus Abbildung 4.13 wurde noch eine weitere mithilfe des theoretischen Modells ausgewertet, diese ist in Abbildung 4.14 gezeigt. Hierfür wurde eine Anregung der Probe bei  $1,016 \text{ eV}$  mit der selben Photonenflussdichte wie in der vorherigen Messung gewählt. Durch die höhere lineare Absorption bei dieser Wellenlänge, wurde diesmal eine Lochdichte von  $5 \times 10^{11} \text{ Ladungsträger/cm}^2$  aus den theoretischen Berechnungen bestimmt. Diese Anregungsenergie entspricht einem Energieüberschuss der Löcher von  $10 \text{ meV}$  und einer resultierenden initialen Temperatur des Lochsystems von  $120 \text{ K}$ . Die höhere Ladungsträgerdichte in diesem Falle führt zu einem ausgeprägteren Ausbleichen über den gesamten beobachteten spektralen Bereich. Wieder ergab sich für das Lochsystem eine Temperatur von  $1400 \text{ K}$  bei einer Zeit von  $10 \text{ ps}$  nach der optischen Anregung. Um die Abkühlungsdynamik in den beiden Fällen besser vergleichen zu können, sind in Abbildung 4.16 die aus dem Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse gewonnenen Abkühlkurven aufgetragen. Diese zeigen den wie in Abbildung 4.7b erwarteten Verlauf. In den ersten  $50 \text{ ps}$  kommt es zu einer schnellen Abkühlung des Ladungsträgersystems auf eine Temperatur von etwa  $200 \text{ K}$ . Danach verlangsamt die Abkühlung, so dass das Ladungsträgersystem nach weiteren  $50 \text{ ps}$  immer noch eine Temperatur von  $130 \text{ K}$  besitzt. Die Änderung der Abkühlgeschwindigkeit bei  $200 \text{ K}$  passt gut mit der in Abbildung 4.7a gezeigten Energieverlustrate zusammen, die in diesem Bereich eine Abkühlgeschwindigkeit von wenigen zehn  $\text{K pro ps}$  angibt [82]. Dass insgesamt eine langsamere Abkühlung beobachtet wird als aus Abbildung 4.7a vermutet, liegt vornehmlich an Struktur der verwendeten Probe. Aus GaAs ist ein verlängern der Abkühlzeiten bekannt, wenn von Volumenmaterialproben zu 2D Quantenfilmproben übergegangen wird [91].

Bei bisherigen Experimenten an Germanium Volumenmaterialien [81, 92] konnten keine energetische Kopplung zwischen den beiden Ladungsträgersystemen festgestellt werden. Allerdings wurden die Ladungsträger in diesen Experimenten mit einer hohen Überschussenergie zur Bandkante angeregt, was zu anfänglichen Ladungsträgertemperaturen von über  $5000 \text{ K}$  führt. Diese hohe Temperatur hat großen Einfluss auf die Dynamik des Ladungsträgersystems. Neben dem größeren nutzbaren Streu-

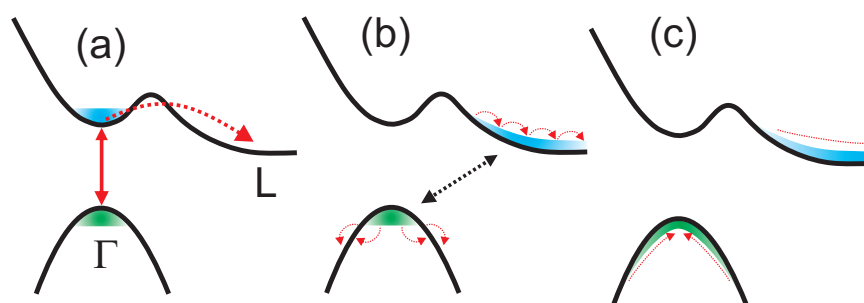


Abbildung 4.15: Nach einer optischen Anregung von Elektronen und Löcher am  $\Gamma$ -Punkt **a** kommt es zu einer schnellen Streuung der Elektronen in die L-Täler. Während der Streuung oder bei der Thermalisierung des Elektronensystems kommt es zu einem Energieübertrag von den Elektronen in das Lochsystem **b**. Dieses führt zur Ausbildung einer heißen Lochverteilung. Sowohl das Elektronen- wie auch das Lochsystem kühlen anschließend durch Phononenwechselwirkung auf Gittertemperatur ab.

kanälen zwischen den verschiedenen Bändern, findet hier die Elektronenstreuung in die L-Täler auch über die energetisch höher gelegenen X-Täler statt[93]. In diesen Experimenten weisen Elektronen und Lochverteilungen zudem wesentlich ähnlichere Temperaturen auf. In dem hier gezeigten Falle, kommt es zu einem starken Unterschied in der mittleren Energie der Elektronen und Löcher. Das abweichende Verhalten der hier vorgestellten Ergebnisse kann also teilweise in der stark unterschiedlichen Energieverteilung der Ladungsträgersysteme begründet sein. Als Mechanismen für die Kopplung der beiden Ladungsträgersysteme kommen Coulombwechselwirkung, Phononstreuung, Phononbadeffekte, so wie Auger-Prozesse in Frage. Eine effiziente Coulombwechselwirkung der Ladungsträger könnte die sehr kurzen Zeitskalen des Energieübertrages auf das Lochsystem erklären. Allerdings nimmt die Wahrscheinlichkeit für Coulombstreuung mit  $1/|\mathbf{k}|$  ab, was aufgrund des großen  $|\mathbf{k}|$  Unterschiedes von Elektronen und Löchern eine starke Beeinträchtigung ist. Für heiße Ladungsträgerverteilungen spielt sie jedoch gerade in Germanium eine wichtige Rolle. Dies liegt an der Ähnlichkeit des Verlaufs von Leitungsband und Valenzband in der  $\Gamma$ -L-Richtung. Das Leitungsband zeigt hier sehr ähnliche effektive Massen wie das Schwer- und Leichtlochband. Dadurch wird die Kleinwinkelcoulombstreuung zwischen den Ladungsträgern der einzelnen Bänder besonders effizient. Zwischen den beiden Lochbändern führt dies sogar dazu, dass die Matrixelemente für die Intra- und Interbandstreuung vergleichbar groß werden. Eine weitere Möglichkeit ist die Phononen assistierte Streuung der Ladungsträger. Diese hat den Vorteil, dass die Energie-Impuls Erhaltung durch die Nutzung eines Phonons leichter zu realisieren ist, was den nutzbaren Phasenraum und damit die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozess vergrößert. Direkt nach der Anregung der Ladungsträger ist aufgrund der niedrigen Temperatur

des Kristallgitters, nur eine Emission von Phononen möglich. Durch die Streuung der Elektronen zu den L-Tälern und deren Thermalisieren kommt es aber zur Ausbildung eines Phononenbades. Dieses wirkt zum einen unterstützend für die phononenassiierte Streuung zwischen Elektronen und Löchern und kann zum anderen auch direkt mit dem Lochsystem Wechselwirken. Zudem kann auch durch Auger-artige Prozesse bei der Streuung der Elektronen in die L-Täler ein Energieübertrag auf das Lochsystem stattfinden. Aufgrund der hohen Geschwindigkeit des Energieübertrages auf das Lochsystem ist es hier nicht möglich, weitere Informationen über den Kopplungsmechanismus zwischen den Ladungsträgersystemen zu gewinnen. Dazu bedarf es einer mikroskopischen Theorie, welche die Streuung von Elektronen und Löchern mit Ihren Vielteilchenkorrelationen berücksichtigt.

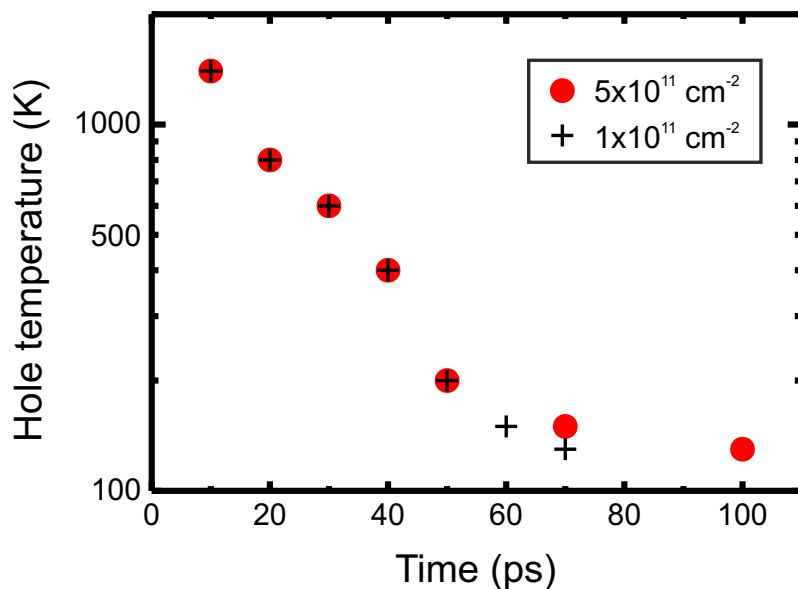


Abbildung 4.16: Abkühlungskurven für die Abbildung 4.13 und 4.14 gezeigten Messungen. Die Kurven wurden durch den Vergleich der experimentellen mit den theoretischen Ergebnissen bestimmt.

#### 4.2.4 THz induzierte Aufheizung von Ladungsträgersystemen

Die Beobachtung des Ladungsträgersystems nach einer optischen Interbandanregung umfasst auch immer die reiche Dynamik der Interbandübergänge im Elektronensystem und wie gesehen, das Aufheizen des Lochsystems durch dessen Kopplung an das heiße Elektronensystem. Die THz-Spektroskopie bietet die Möglichkeit, diese Effekte von der reinen Abkühlung des Ladungsträgersystems abtrennen zu können. In der Literatur wurden GaAs bereits Experimente mit optischer Anregung und THz

Abfrage [94] vorgestellt. Außerdem wurden an dotierten Proben Experimente mit THz Anregung und Abfrage durchgeführt [95]. Die hier vorgestellten Messungen erweitern diese Techniken auf ein Dreimpuls Experiment mit optische Anregung, THz Anregung und optischer Abfrage der Probe. Dazu wird in der Probe zunächst mit einem optischen Impuls Ladungsträger angeregt, die wie gezeigt in den ersten hundert fs einen Großteil ihrer Energie an das Kristallgitter ab. Nachdem das Ladungsträgersystem seinen Quasigleichgewichtszustand erreicht hat, wird es mit einem THz Impuls angeregt. Aufgrund der niedrigen Energie der THz-Photonen können diese keine Interbandübergänge der Ladungsträger induzieren. Innerhalb der Bänder ist dies jedoch möglich, was zu einem Aufheizen der Ladungsträgerverteilungen führt. Dieses Aufheizen der Ladungsträgerverteilung kann wiederum in der Transmission durch die Probe beobachtet werden. Abbildung 4.17a zeigt eine solche Messung an der Germanium Quantenfilmprobe. Der optische Impuls trifft hier bei -300 fs auf die Probe, was zu dem starken Einbruch in der Absorption  $\alpha_L$  an der Resonanz des HH1-LH1 Überganges führt. Ohne die Anwesenheit des THz Impulses (blaue Dreiecke) kommt es in den folgenden hundert von fs zur Abkühlung des Ladungsträgersystems, und damit zu einer weiter reduzierten Absorption der Resonanz, bis die Gittertemperatur erreicht ist und sich das System damit an sein Quasigleichgewicht annähert. Die Abnahme der Absorption an der Resonanz folgt einem monoexponentiellen Verlauf mit einer Zeitkonstante von 114 ps. Wird zusätzlich bei  $t = 0$  der THz Impuls auf die Probe gestrahlt (gelbe Punkte), kommt es zu einer schlagartigen Erhöhung der Absorption. Dies ist das erwartete Verhalten, da die jetzt heiße Lochverteilung zu einer Reduktion der Ladungsträger bei  $k = 0$  führt. Für SOA<sup>3</sup> wurde ein solches Aufheizen um mehrere hunderte von Kelvin auch schon mithilfe einer auf Halbleiter-Blochgleichung basierenden Theorie vorhergesagt [96]. Nach der Wechselwirkung des Systems mit dem THz-Impuls kühlt es in der folgenden Zeit ab und erreicht nach etwa einigen hundert fs das thermische Gleichgewicht mit dem Kristallgitter. Der Verlauf dieses Signals ist auch wieder monoexponentiell, diesmal mit einer Zeitkonstante von 526 ps.

Zusätzlich zu dem oben gezeigten zeitlichen Verlauf wurde in einem weiteren Experiment die Abhängigkeit dieses Effektes von der angeregten Ladungsträgerdichte untersucht. Wie in Abbildung 4.17b dargestellt. Wird die Probe zunächst mit einer Photonenflussdichte des optischen Impulses von  $16 \times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt (gelb), wird kurz vor dem Eintreffen des THz-Impulses eine fast vollständige Ausbleichung der Absorption der Probe an der Bandkante beobachtet. Durch die Wechselwirkung mit dem THz-Impuls kommt es, wie schon zuvor beschrieben, zu einem Aufheizen der

---

<sup>3</sup>Kurz für: semiconductor optical amplifier: halbleiterbasierter optischer Verstärker

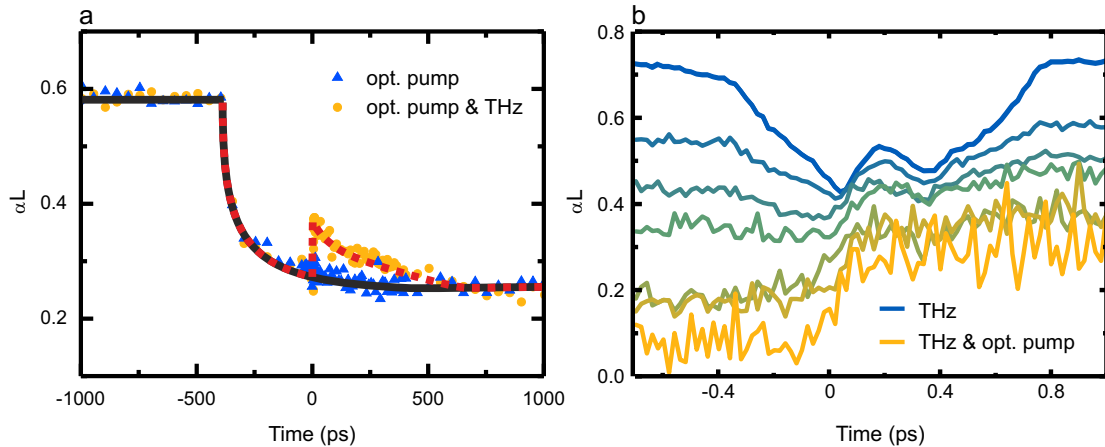


Abbildung 4.17: **a** Einfluss des THz Impulses auf die zeitliche Entwicklung der Absorption bei 0,936 eV. Die Probe wurde bei -300 ps mit einem optischen Impuls resonant zum HH1-c $\Gamma$ 1 Übergang mit  $1 \times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup> angeregt. Die blauen Punkte zeigen eine Messung bei der nur der optische Impuls auf die Probe trifft. Bei den gelben Punkten trifft zusätzlich dazu ein THz Impuls mit 11,5 kV/cm auf die 10 K kalte Probe. Die schwarze und rote Linie deuten den Verlauf der Absorption an. **b** zeigt das Verhalten der Absorption um die Zeitnull unter den selben Bedingungen wie in **a**, jedoch mit variabler Flussdichte des optischen Impulses. Die Dichte beträgt dabei 0 (blaue Linie), 1, 2, 3, 2, 6, 1, 8, 4, 16 (gelbe Linie)  $\times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup>.

Lochverteilung, was sich wieder in einer Erhöhung der Absorption bemerkbar macht. Wird die Flussdichte des optischen Impulses reduziert, geht das Verhalten der Probe kontinuierlich in den in Kapitel 3.1.3 beschriebenen Autler-Townes Effekt über. Bemerkenswert ist der kontinuierliche Übergang zwischen den beiden Regimen. So zeigt die Probe unter einer Anregung von  $2,3 \times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup> eine Überlagerung der beiden Grenzfälle zu etwa gleich großen Teilen. Während der kohärente Teil der durch den Abfragimpuls induzierten Polarisation das Verhalten aus Kapitel 3.1.3 zeigt, führt die Wechselwirkung mit der inkohärenten Besetzung, die größten Teils von der initialen optischen Anregung kommt, zu der merklichen Aufheizung des Lochsystems. Diese Flussdichte stellt auch gewissermaßen die Grenze der beiden Bereiche dar. Wird die Ladungsträgerdichte im Material weiter erhöht, führt dies zu einer Reduktion der Kohärenzzeit der Abfragepolarisation und der kohärente Anteil des Signals verschwindet. Diese neuartige Messmethode bietet also die Möglichkeit neben der Ladungsträgerdynamik des Lochsystems, auch die Kohärenzzeit im angeregten Zustand zu erforschen. Um den genauen kohärenten Anteil der induzierten Abfragepolarisation zu bestimmen, ist jedoch eine rigorose theoretische Analyse der Daten von Nöten.

### 4.2.5 Zusammenfassung

Die Messungen und theoretischen Simulationen ergeben wie in Abbildung 4.15 gezeigt ein schlüssiges Bild der Lochdynamik nach einer optischen Anregung. Eine resonante Anregung der Elektronen-Loch-Paare führt zunächst zu einer Besetzung im  $\Gamma$ -Tal. Das Streuen der Elektronen zu den L-Tälern führt zu einem Aufheizen der Elektronenverteilung. Durch eine Kopplung wird Energie aus dem Elektronensystem in das Lochsystem übertragen, welches zu einer Aufheizung der Löcher führt. Im Anschluss daran kommt es zu einer Abkühlung der Ladungsträger, welche sich in der linearen Absorption als Ausbleichen manifestiert, erzeugt durch die Pauliblockade der Löcher. Die zeitliche Entwicklung der Temperatur der Lochverteilung wurde mithilfe einer theoretischen Simulation ausgewertet. Aus dieser ergeben sich die Kühlkurven des Lochsystems, wie in Abbildung 4.16 gezeigt. Diese zeigen wie erwartet zunächst eine schnelle durch optische Phononen vermittelte Abkühlung der Löcher. Ab einer Ladungsträgertemperatur von etwa 200 K verliert die Streuung an optischen Phononen aufgrund der geringen mittleren Energie der Ladungsträger ihre Dominanz. Im folgenden wird die Abkühlung der Löcher hauptsächlich von akustischen Phononen bestimmt, was zu einer Verringerung der Energieverlustrate und somit zu einer Verlangsamung der Abkühlung führt. Die Ergebnisse haben einen starken Einfluss, bei der Betrachtung der optischen Verstärkung in Germanium. Durch das schnelle Aufheizen der Lochverteilung zu frühen Zeiten, stellt nicht mehr nur die Elektronenbesetzung in der Nähe des direkten optischen Überganges einen limitierenden Faktor für die Ausbildung einer Ladungsträgerinversion dar. Dieses wird in Kapitel 4.3 noch weiter diskutiert. Zuletzt wurde die Wechselwirkung von THz Impulsen auf eine abgekühlte Ladungsträgerverteilung betrachtet. Dieses führt ebenso zu einer Aufheizung des Ladungsträgersystems, was durch einen Rückgang der Absorption an der direkten Bandkante der Probe beobachtet wurde. Diese Methode hat den Vorteil, dass die Dynamik nicht wie im Falle der direkten optischen Anregung der Ladungsträger von der  $\Gamma$ -L Streuung der Elektronen überlagert wird. Außerdem erhält man durch das Aufheizen der kalten Lochverteilung mit den niederenergetischen THz-Photonen keine so ausgeprägten nicht thermischen Verteilungen, wie es bei einer direkten optischen Anregung der Fall ist.



## 4.3 Optische Verstärkung in Germanium

In den letzten Jahren hat sich Germanium als einer der Hoffnungsträger für die Siliziumphotonik herausgestellt. Das Ziel ist die Integration optischer Bauelemente in die etablierte Siliziumtechnologie. Die dafür notwendigen Elemente sind Lichtemitter, optischer Modulatoren, sowie Detektoren. Das größte Problem für die Realisierung solcher elektro-optischen Bauelemente stellen aktuell die Lichtquellen dar. Die für die optische Datenübertragung geforderten Eigenschaften für die Lichtquelle wie Effizienz und Strahlprofil machen die Nutzung von Bauteil integrierter Lasern unausweichlich. Dazu gibt es verschiedene Ansätze wie die hybride Integration direkter Halbleiter[97, 98], Silizium Nanokristalle[2] und Raman Laser[99], um nur einige zu nennen. Jedoch kann keiner bisher alle Anforderungen für den Einsatz der Materialien als das Lasermaterial der Siliziumphotonik bedienen. Wichtige Kriterien sind dabei die Kompatibilität zum CMOS<sup>4</sup> Prozess, sowie die einfache Miniaturisierbarkeit der Strukturen. Germanium scheint bei der Suche nach einem solchen Material aufgrund seiner indirekten Bandkante zunächst als ein wenig aussichtsreicher Kandidat. Allerdings besitzt Germanium durch sein lokales Leitungsbandminimum am  $\Gamma$ -Punkt, wie bereits gesehen, ausgeprägte optische Eigenschaften, ähnlich denen von direkten Halbleitern. Das Material zeigt beispielsweise einen starken quantum-confined Stark Effekt<sup>5</sup> [8] welcher zur Realisierung elektro-optischer Modulatoren mit Schaltgeschwindigkeiten von bis zu 10 GHz genutzt werden konnte[20, 100]. Auch konnte die direkte Photolumineszenz des direkten Bandüberganges beobachtet werden[32, 101]. Diese kommt durch den geringen energetischen Unterschied zwischen den Minima des  $\Gamma$ -Tal und der L-Täler zustande, welches ein Rückstreuen der Ladungsträger ins  $\Gamma$ -Tal erlaubt und somit eine optische Rekombination der Ladungsträger ermöglicht. Messungen an der Germanium Quantenfilmprobe #8009 zeigten sogar eine transiente optische Verstärkung in dem Material (vergleiche Abb.4.18)[62, 102].

Um das Potential von Germanium als Lasermaterial voll ausschöpfen zu können, ist ein Verständnis der ablaufenden Prozesse entscheidend. Zunächst soll hier die optische Verstärkung in Germaniumquantenfilmen diskutiert werden. Die Probe #8009 bietet sich hierfür durch Ihre gute Materialqualität an.

Durch die Anregung der 4 K kalten Probe mit fs Laserimpulsen bei 0,91 eV knapp oberhalb der HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz mit einer Photonenflussdichte von  $2,5 \times 10^{19}$  Photonen/cm<sup>2</sup>

---

<sup>4</sup>engl.: Complementary metal-oxide-semiconductor

<sup>5</sup>engl.; etwa Stark Effekt in räumlich eingeschränkten quantenmechanischen Systemen

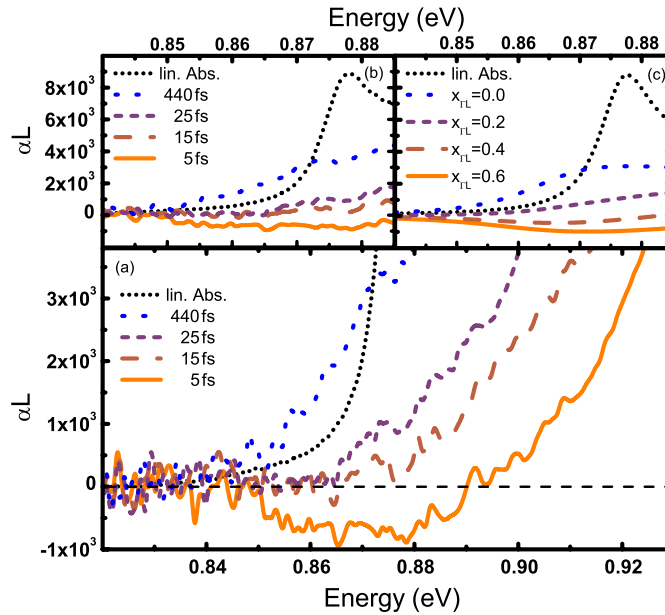


Abbildung 4.18: Zeitaufgelöstes lineares Absorptionsspektrum der Probe #8009 um den HH1-c $\Gamma$ 1 Resonanz bei 293 K. Gezeigt ist die Absorption eines Quantenfilmes. **a** Experimentelle Spektren bei einer Anregung mit  $2,5 \times 10^{19}$  Photonen/cm<sup>2</sup> bei 0,91 eV. Gezeigt sind die Spektren für Zeitversätze von 5, 15, 25 und 440 fs nach der Anregung. Die Messung zeigt eine maximale optische Verstärkung von  $\alpha_L = -8 \times 10^{-4}$  pro Quantenfilm. **b** und **c** zeigen eine Gegenüberstellung der experimentellen Daten (links) mit theoretischen Spektren (rechts) für verschiedene Besetzungsverhältnisse  $x_{\Gamma L}$  zwischen  $\Gamma$  und L bei einer Ladungsträgerdichte von  $1,7 \times 10^{12}$  cm<sup>-2</sup>. Die lineare Absorption ist als schwarz gepunktete Linie gezeigt. (veröffentlicht in Ref. [62])

konnte eine optische Inversion des Materials bei 0,87 eV erreicht werden, wie in Abbildung 4.18 dargestellt. Eine theoretische Modellierung ergab für die gezeigten Spektren eine Ladungsträgerdichte von  $1,7 \times 10^{12}$  cm<sup>-2</sup>. Dabei wurde eine Lebensdauer der optischen Verstärkung von 20 fs beobachtet. Die Lebensdauer dieser transienten Verstärkung ist jedoch zu kurz, um daraus einen Laser konstruieren zu können. Um diese transiente Verstärkung zu stabilisieren, ist natürlich der erste Ansatz, eine stärkere Anregung der Probe zu erreichen. Bei den zur Anregung genutzten 100 fs Impulsen ist die Zahl der anregbaren Ladungsträger jedoch durch die Pauli-Blockade bereits angeregter Ladungsträger beschränkt. Daher liegt es nahe, die zeitliche Länge des anregenden Impulses zu erhöhen. Ist diese im Vergleich zu der Streuzeit der Elektronen sehr lang, spielt die Pauliblockade angeregter Ladungsträger nur noch eine nebensächliche Rolle. Dies bieten zusätzlich den Vorteil einer kontinuierlichen Ladungsträgergeneration am  $\Gamma$ -Punkt, so dass sich ein Quasigleichgewicht ausbilden kann. So können auch mit niedrigen Anregungsleistungen wesentlich mehr Ladungsträger angeregt werden, als im Falle der fs Anregung. Weiterhin hat dies den Vorteil, dass auch elektronische Rückstreuprozesse von den L-Tälern zum  $\Gamma$ -Tal, zu einer signi-

fikanten Erhöhung der Elektronendichte im optisch aktiven Bereich der Bandstruktur führen. Aus diesen Gründen wurde die Probe daher in einem weiteren Experiment mit einem 80 ps langen Laserimpuls angeregt. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 4.19 dargestellt. Dieses Experiment wurde bereits in Ref. [103] gezeigt,

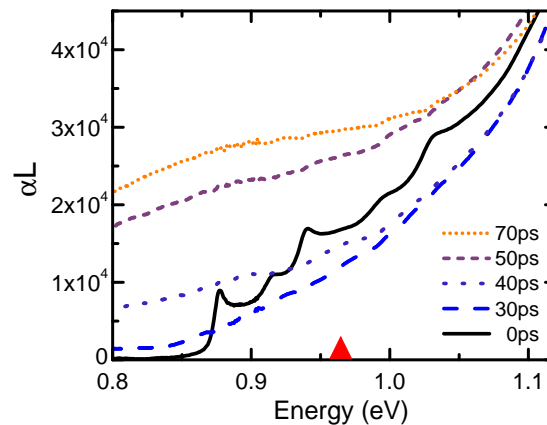


Abbildung 4.19: Die Abbildung zeigt die Absorption der Probe #8009 (pro Quantenfilm) bei Raumtemperatur nach Anregung mit einem 80 ps langen Impuls im Kontinuum des HH2-cΓ2 Überganges bei 0.98 eV (rotes Dreieck), mit  $2 \times 10^{18}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die gestrichelten Kurven zeigen die Absorption der Probe 30, 40, 50, und 70 ps nach der optischen Anregung. Die schwarze Kurve zeigt die lineare Absorption. (veröffentlicht in Ref. [62])

ist hier jedoch neu ausgewertet worden. Entgegen des erwarteten Ausbleichens oder gar einer optischen Verstärkung ist in dieser Messung eine Erhöhung der Absorption nach der Anregung zu beobachten. Diese erhöhte Absorption zeigt sich auch signifikant weit unterhalb der direkten Bandkante. Der einzige Unterschied zur Anregung mit fs Licht liegt hier, wie gesagt, in der Anzahl der angeregten Ladungsträger. Als Quelle für diese Erhöhung ist somit eine Absorption des einfallenden Abfragelichtes durch Anregung der bereits erzeugten Ladungsträger zu vermuten. Für die Löcher ist diese freie Ladungsträgerabsorption ein bekannter Prozess, der ausgiebig an dotierten Ladungsträgern vermessen wurde [104]. Dabei kommen Anregungen der erzeugten Ladungsträger vom Schwerlochband in das Leichtlochband und das Split-off Band in Frage. Durch die unterschiedlichen Krümmungen der Lochbänder und die heiße Temperatur der Lochverteilung ist hier ein breites Spektrum von Übergangsenergien realisierbar, was die starke Absorptionserhöhung unterhalb der Bandkante erklärt (vergl. Abbildung 4.20b). Zudem ist auch die phononenassistierte Anregung der Elektronen in die X- oder L-Täler, sowie in höhere gebundene Elektronenbänder möglich. Den Großteil des Effektes trägt aber die Absorption innerhalb des Lochsystems, wie im weiteren gezeigt werden wird. In Verbindung mit der ausbleichenden Absorption vom

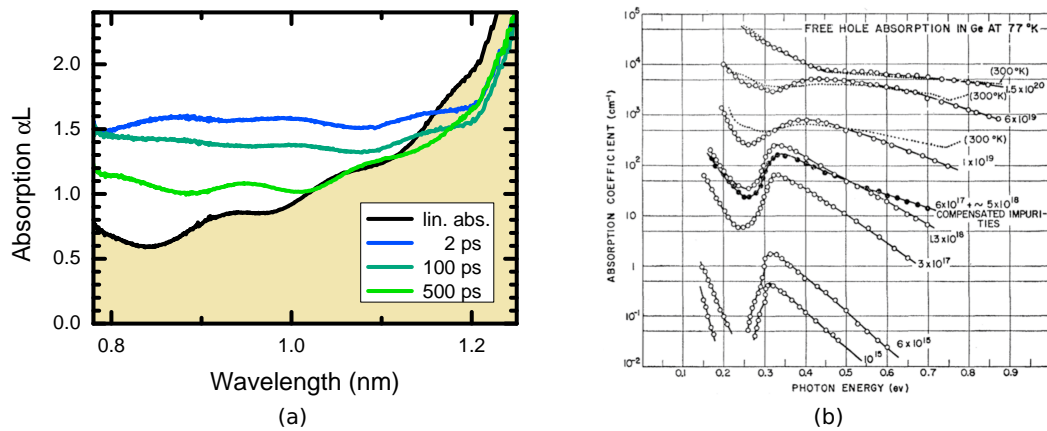


Abbildung 4.20: **a** Absorption in der p-dotierten Probe #56456 nach einer optischen Anregung mit einem 100 fs Anregimpuls bei 0,877 meV mit  $3 \times 10^{18}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Dotierung der Probe beträgt  $1 \times 10^{19}$  cm<sup>-2</sup>. Die gelbliche Fläche zeigt die lineare Absorption der Probe als Referenz. Aufgrund der freien Ladungsträgerabsorption der durch die Dotierung erzeugten Löcher, erreicht die lineare Absorption keine Transparenz unterhalb der Bandkante. Die farbigen Linien zeigen die Absorption zu ausgewählten Zeitpunkten nach der optischen Anregung. Diese führt nicht zu einem Ausbleichen der Absorption, sondern erzeugt sogar einen Anstieg der Absorption über einen breiten spektralen Bereich. **b** Experimentelle Werte der freien Ladungsträgerabsorption der Löcher (aus Ref. [104]).

Valenz- zum Leitungsband kommt es dann durch die freie Ladungsträgerabsorption zu dem in Abbildung 4.19 beobachteten strukturlosen Absorptionsverhalten.

Um die Dominanz des Lochsystems an der freien Ladungsträgerabsorption eindeutig nachweisen zu können wurde das Experiment mit fs Anregung an einer Probe mit p-dotiertem Germanium wiederholt. Die Messung ist in Abbildung 4.20a gezeigt. Schon die lineare Absorption der Probe zeigt unterhalb der Bandkante bei  $\approx 0,85$  eV keinen Rückgang der Absorption mehr in die Transparenz. Die Anregung der Probe mit 100 fs langen Impulsen und einer Photonenflussdichte von  $3 \times 10^{18}$  Photonen/cm<sup>2</sup> zeigt ein ähnliches Verhalten der Probe wie bei der undotierten Quantenfilmprobe für die ps Anregung. Experimente an n-dotiertem Germanium, wie in Abbildung 4.22 dargestellt, zeigen auch bei vergleichbar starker Dotierung kaum eine Erhöhung der Absorption nach der optischen Anregung. Das Einbringen weiterer Ladungsträger und das damit verbundene Aufheizen der Lochverteilung ist also der wichtige Prozess, der zur Ausprägung der freien Ladungsträgerabsorption führt.

Ein Ansatz, diesen störenden Effekt möglichst gering zu halten, ist die Erhöhung der Ladungsträgerdichte am  $\Gamma$ -Punkt, ohne die Gesamtzahl der angeregten Löcher zu erhöhen. Für das elektronische System ist dieses durch eine Erhöhung der durch Rückstreuung aus den L-Tälern zum  $\Gamma$ -Punkt gelangenden Ladungsträger zu errei-

chen. Dazu könnten die Elektronen mit einer größeren Überschuss Energie zur Bandkante erzeugt werden. Durch die höhere Temperatur der so entstehenden Elektronenverteilung würde sich auch die Besetzung im  $\Gamma$ -Tal erhöhen. Allerdings hätte das zwangsläufig auch ein Aufheizen des Lochsystems zur Folge, was somit effektiv eine Verschlechterung darstellt. Ein weiterer Ansatz ist es, den energetischen Abstand zwischen dem  $\Gamma$ - und den L-Minima zu reduzieren, um damit das Rückstreuen von Elektronen zu begünstigen. Die Verwendung von verpannten Germaniumschichten bietet hier eine Möglichkeit dies zu realisieren. Wie in Kapitel 2.2.2 gezeigt, führt eine tensile Verspannung der Germaniumschicht gerade zu der gewünschten Reduktion der energetischen Differenz zwischen den Tälern. Mithilfe von 30 Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Rechnungen wurde sogar für hinreichend starke tensile Verspannungen den Übergang von Germanium zu einem direkten Halbleiter vorausgesagt [10]. Dieser befindet sich dann allerdings im ferninfraroten Bereich. Eine möglichst starke Verspannung des Materials, ist also wünschenswert. Allerdings nimmt die Materialqualität mit zunehmender Verspannung durch den Einbau von Störstellen ab. Daher gilt es also, die Verspannung und die Materialqualität gegeneinander abzuwägen um ein optimales Ergebnis zu erreichen. Die in den betrachteten Quantenfilmen vorliegende kompressiven Verspannung des Materials ist also hinderlich und führt zu einer Erhöhung des energetischen Abstandes zwischen dem  $\Gamma$  und den L-Minima.

Ein weiterer Ansatz zu Erhöhung der Elektronendichte im  $\Gamma$ -Tal ist das Einbringen von Elektronen durch eine n-Dotierung des Materials. Diese Elektronen führen zu einer Auffüllung der Zustände in den L-Tälern und erhöhen damit wiederum die Effizienz der L- $\Gamma$  Streuung. Dies ist schematisch in Abbildung 4.21 dargestellt. Eine möglichst hohe Dotierung der Germaniumschicht ist also wünschenswert. Auch hier gilt es allerdings unter Berücksichtigung der Materialqualität eine optimale Konzentration der Dotieratome zu finden. Erste Rechnungen tensil verspannter, n-dotierter Germaniumschichten sagen wie erwünscht eine optische Verstärkung bei hohen Ladungsträgerdichten voraus [105], die mittlerweile auch experimentell nachgewiesen wurden [9].

Im Lochsystem sind die Möglichkeiten für Optimierungen geringer als für das Elektronensystem. Dennoch sollte eine möglichst kalte Ladungsträgerverteilung angestrebt werden, da dies zum einen die Zahl der Ladungsträger im Zentrum der Brillouin-Zone erhöht, zum anderen aber auch durch die geringere Ausdehnung der Verteilung im  $\mathbf{k}$ -Raum den Phasenraum für die Absorption der angeregten Ladungsträger reduziert. Allerdings ist der Energieüberschuss der Löcher zur Bandkante bei der Erzeugung, im Vergleich mit dem des Elektronensystem in den L-Tälern relativ gering. Aufgrund der

bereits diskutierten Kopplung zwischen Elektronen und Lochsystem nach der Anregung wird jedoch auch das Lochsystem durch die Temperatur des Elektronensystems mitbestimmt. Ein Reduzieren des energetischen Unterschiedes zwischen dem  $\Gamma$  und den L Minima führt also auch beim Lochsystem zu einer kälteren Ladungsträgerverteilung nach der Anregung.

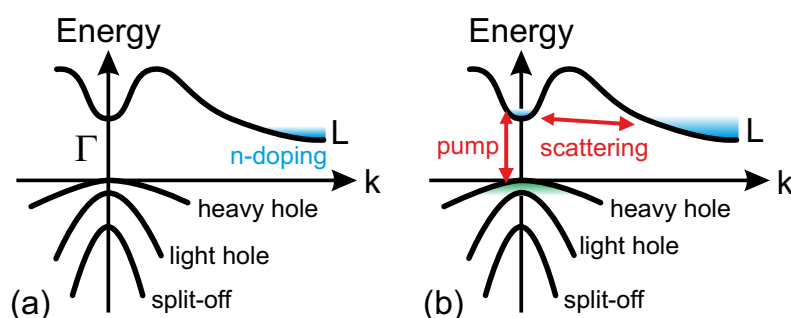


Abbildung 4.21: Schematische Darstellung des Einflusses der n-Dotierung von Germanium auf die Dynamik nach einer optischen Anregung. **a** Das Dotieren führt zu einem Auffüllen der Zustände in den L-Tälern. **b** Regt man die Probe nun optisch an, erhält man eine erhöhte Rückstreuung von Elektronen ins  $\Gamma$ -Tal. Diese begünstigt die Ausbildung einer Ladungsträgerinversion auf längeren Zeitskalen. Die Bandstruktur ist hier für eine kompressiv verspannte Germaniumschicht gezeigt. Bei einer tensilen Verspannung würden Leicht- und Schwerlochband ihre Reihenfolge tauschen.

Unter dem Hintergrund der oben genannten Optimierungen wurden solche verspannte, dotierten Germaniumschichten in der Probenserie #56426 - #56429 hergestellt. Diese Proben bestehen alle aus einer  $1\,\mu\text{m}$  dicken Germaniumschicht die entspannt, bei einer Temperatur von 773 K auf einem Siliziumsubstrat abgeschieden wurde. Dies führt bei der Abkühlung der Proben auf Raumtemperatur zu einer Verspannung von zwischen 0,02% bis 0,10% (vergl. Kapitel 2.4.2). Im Experiment wurde die Probe zusätzlich auf 4 K gekühlt um die Verspannung der Germaniumschicht noch weiter zu erhöhen. Die Dotierung der Proben liegt bei  $2 \times 10^{16}\,\text{cm}^{-3}$  für die Probe #56426, und erhöht sich mit  $4 \times 10^{17}\,\text{cm}^{-3}$  (#56427) und  $2,4 \times 10^{18}\,\text{cm}^{-3}$  (#56428) bis hin zu  $2,5 \times 10^{19}\,\text{cm}^{-3}$  bei der Probe #56429. Die Ergebnisse der Experimente sind in Abbildung 4.22 dargestellt. Die Messungen zeigen für die Probe #56426 ein Ausbleichen bis hin zur Transparenz der Probe, welches sich in den ersten 130 ps ausbildet. Dieses Ausbleichen bildet sich in den folgenden 2 ns langsam zurück. Es ist auffällig, dass die direkte Dynamik in diesen Proben, wie erwartet, nicht mehr durch die schnelle  $\Gamma$ -L Streuung beschränkt ist. Auch die starke freie Ladungsträger Absorption, wie im Falle der Quantenfilmprobe, zeigt sich nicht mehr. Die n-Dotierung und tensile Verspannung des Materials führt also wie gewünscht zu einer erhöhten Rückstreurate von Elektronen ins  $\Gamma$ -Tal, die effektiv zu einem stärkeren Ausbleichen der Absorption

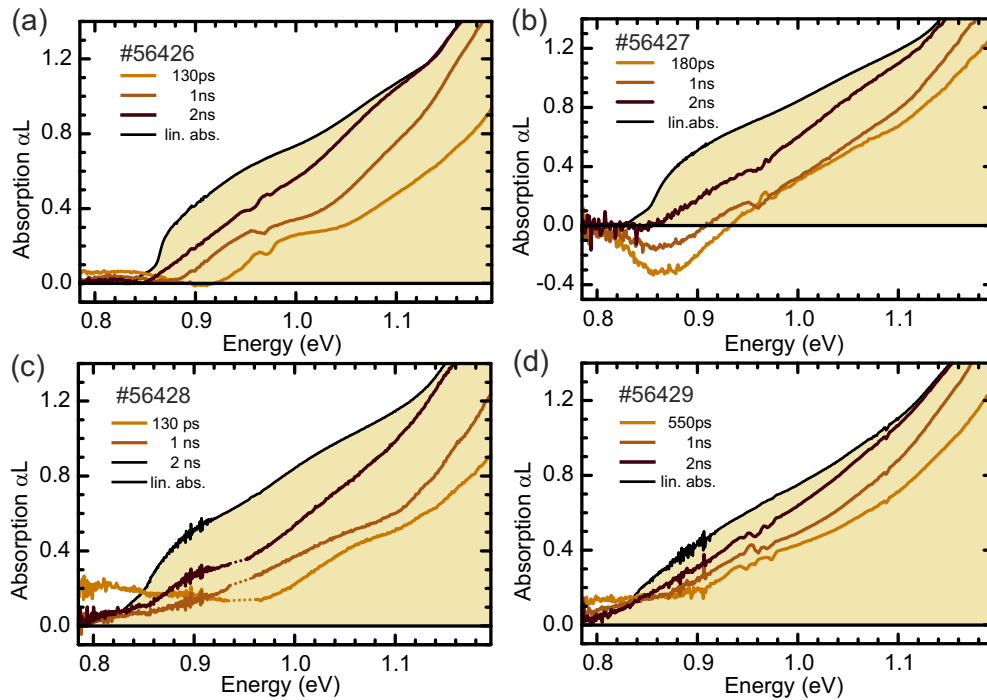


Abbildung 4.22: Absorption der Proben #56426, #56427, #56428 und #56429 nach einer Anregung bei 0,96 eV (0,954 eV bei Probe #56428) mit einem 80 ps Laserimpuls mit  $4,4 \times 10^{18}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Probentemperatur betrug 4 K. Die lineare Absorption der Proben ist durch die gelbe Fläche angedeutet. Gezeigt sind ausgewählte Spektren von 130 ps bis 2 ns nach der optischen Anregung. Bei der Probe #56427 konnte eine optische Verstärkung mit einer Lebensdauer von etwa 2 ns beobachtet werden. Bei Probe #56428 wurde ein spektraler Teil aufgrund von Artefakten durch Streulichtschwankungen des Anregungsimpuls entfernt, der Verlauf der Absorption ist in diesem Bereich durch gepunktete Linien angedeutet.

führt. Bei der Probe #56427 kann nun sogar eine Absorption von  $\alpha L = -0,33$  beobachtet werden, die sich erst nach 2 ns wieder zurückbildet. Dies entspricht einer Verstärkung von  $g = -\alpha = 330 \text{ cm}^{-1}$ . In direkten Lasermaterialien, wie beispielsweise (GaIn)As, liegt die optische Verstärkung typischerweise im Bereich von  $g = 2000 \text{ cm}^{-1}$ , bei einer Anregung von  $6 \times 10^{16} \text{ Photonen/cm}^2$  [98]. Die beobachtete Verstärkung liegt also durchaus in der Nähe von klassischen Lasermaterialien. Leider führt eine weitere Erhöhung der Dotierung nicht mehr zu einer stärkeren Ausprägung der optischen Verstärkung. Dies liegt zum einen an der schlechteren Materialqualität der hochdotierten Proben. Auch eine einsetzende freie Ladungsträgerabsorption durch die Elektronen wäre denkbar. Allerdings würde dies auch eine Erhöhung der linearen Absorption unterhalb der Bandkante, wie in Abbildung 4.20a gesehen vermuten lassen, welches jedoch nicht beobachtet wurde.

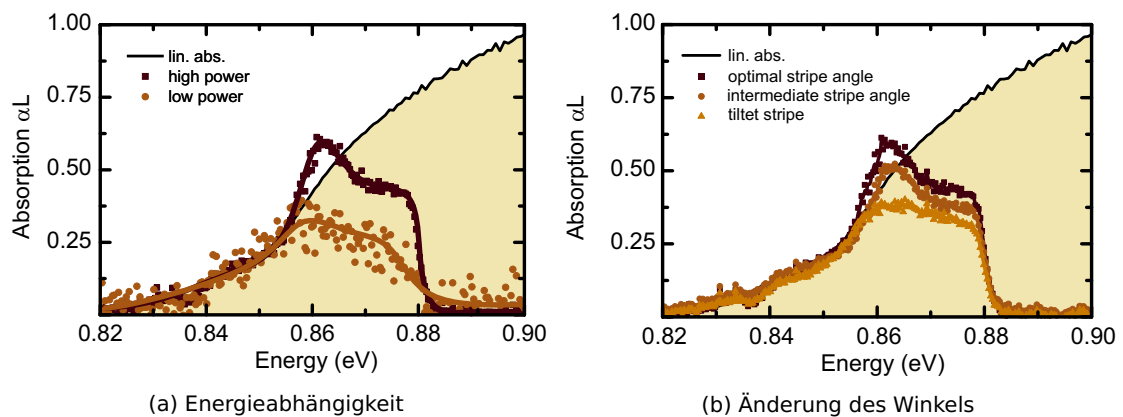


Abbildung 4.23: Spektral aufgelöste Kantenphotolumineszenz der Probe #56427, normiert auf den niederenergetischen Teil der linearen Absorption. **a** Bei einer Reduzierung der Anregungsleistung verschwindet das Maximum der Emission um 0,86 eV. **b** Bei einer Verdrehung des Laserstriches, so dass sich kein durchgehend angeregter Bereich mehr zwischen denen als Resonator wirkende Facetten der Probenstruktur mehr ergibt, kommt es auch zu einem starken Rückgang der Emission aus dem Maximum. Die Emission im restlichen Spektralbereich ist davon jedoch kaum betroffen.

Aufgrund der guten Ergebnisse der Probe #56427 wurde diese mithilfe der Kantenphotolumineszenz-Spektroskopie weiter untersucht. Dazu wurde auf einem Stück der Probe eine stufenpyramiedigenartige Struktur im  $\mu\text{m}$  Bereich freigestellt. Die gewünschte Struktur wurde mit einem Photolack geschützt und der Rest der Probe mit nasschemischem Ätzen so weit abgetragen, dass eine freistehende Struktur entstand. Die Segmente konnten dann mit einem fokussierten Laserstrich angeregt werden, wobei die Facetten der Struktur als Resonator dienen. Die Ergebnisse der anschließenden Messung sind in Abbildung 4.23 dargestellt. Bei einer Anregung der Probe mit Flussdichten im Bereich von  $10^{18} \text{ Photonen/cm}^2$  konnte die Photolumines-



zenz des direkten Bandüberganges gemessen werden. Bei niedrigen Energien folgt diese dem Verlauf der linearen Absorption. Im Bereich von 0,86 eV zeigt sie ein Maximum, welches über den von der linearen Absorption zu erwartenden Wert hinaus geht. Dieses Maximum deckt sich energetisch exakt mit dem Maximum der optischen Verstärkung, wie in Abbildung 4.22 gezeigt. Reduziert man die Photonenflußdichte zu Werten bei denen man auch im Anrege-Abfrage-Experiment keine optischen Verstärkungen mehr findet, verschwindet auch dieses Maximum. Wird der Laserstrich auf der Probe durch Verdrehen so gestellt, dass die angeregte Fläche mit den Fassetten der Pyramidenstruktur keinen Resonator mehr bildet, verschwindet das Maximum, während die benachbarten spektralen Bereiche nur schwach an Intensität verlieren. Diese Messungen bestätigen, dass es sich hierbei mindestens um eine verstärkte, spontane Emission der Probe handelt, möglicherweise befindet sich die Probe sogar im Laserbetrieb. Für die zweifelsfreie Bestätigung des Laserbetriebes wäre jedoch eine Verstärkungsmessung nach der Methode von Hakki und Paoli nötig. Leider konnte aufgrund der schwachen Intensität der Emission aus der Probe jedoch kein Modenspektrum aufgenommen werden. Inzwischen konnten mit solchen Materialien optisch gepumpte Laser realisiert werden [9, 21].

#### 4.3.1 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die optische Verstärkung in verspannten Germaniumschichten diskutiert. In kompressiv verspannten Germaniumquantenfilmen kann aufgrund der schnellen  $\Gamma$  zu L Streuung nur eine transiente optische Verstärkung mit einer Lebensdauer von wenigen zehn fs erreicht werden. Durch Anregung mit längeren Impulsen, konnte in n-dotierten tensil verspannten Germaniumschichten eine optische Verstärkung von bis zu  $g = -\alpha = 330 \text{ cm}^{-1}$  beobachtet werden. An der Energie dieser optischen Verstärkung wurde auch in der Photolumineszenz aus einer Resonatorstruktur eine herauswachsende Linie identifiziert. Das Verhalten der Photolumineszenzspektren deutet darauf hin, dass es sich hierbei um eine verstärkte spontane Emission oder eine Laseremission aus der Probe handelt. Dieses ist eine der ersten Messungen die eine optische Verstärkung in Germanium belegen und untermauern damit das große Potential von verspannten Germanium für Siliziumphotonik. Weiterführende Optimierungen der Probenqualität, sowie der Verspannung und der Konzentration der Dotieratome werden die dieses offenbaren. In dem Zusammenhang ist es auch entscheidend, in wie weit sich die optische Verstärkung des Materials auch durch elektrische Injektion der Ladungsträger erreichen lässt.



## 5 Zusammenfassung

Die Aufmerksamkeit, die Germanium in den letzten Jahren aufgrund seiner guten optischen Eigenschaften auf sich gezogen hat, führte zu einer stetigen Verbesserung der erreichten Materialqualität. Wie gezeigt wurde können durch den Einsatz von virtuellen Substraten bei der Wahl geeigneter Wachstumstemperaturen hochqualitative Quantenfilme und Volumenschichten hergestellt werden, deren Verspannung durch die Wahl dieser Parameter genau eingestellt werden können. An der verwendeten Germanium Quantenfilmprobe konnten so unterschiedlichste optische Phänomene beobachtet werden. Die physikalischen Eigenschaften von Germanium führen dazu, dass es dabei in vielerlei Situationen ein überraschendes Verhalten zeigt, was sich von dem direkter Halbleiter unterscheidet. Diese Eigenschaften sind vornehmlich in der Form der Bandstruktur von Germanium begründet. Trotz seiner indirekten Bandlücke, besitzt es durch das lokale Leitungsbandminimum am  $\Gamma$ -Punkt ausgeprägte Eigenschaften eines direkten Halbleiters.

Die spektroskopische Untersuchung einer (GaIn)As Probe mit sehr starken THz Impulsen zeigte zu einem der ersten Male überhaupt einen intraexzitonischen Autler-Townes Effekt. Durch eine Simulation auf Basis einer mikroskopischen Vielteilchentheorie konnte aus dieser Messung die genaue kohärente Dynamik der Polarisation bestimmt werden. Diese Analyse ergab, dass die in der Literatur häufig verwendeten theoretischen Zweiniveausystem Modelle für die Anregung von Exzitonen mit kurzen THz Impulsen ein falsches Bild von den ablaufenden Prozessen abgeben. Es zeigt sich, dass das Exzitonenensemble nach der Anregung nicht auf wenige Zustände beschränkt ist, sondern Zustände bis tief in das Kontinuum angeregt sind. Trotz der wesentlich kürzeren Dephasierungszeit in Germanium konnte auch hier diese Aufspaltung der Exzitonenresonanz beobachtet werden. Allerdings folgt die kohärente Polarisation in Germanium dem THz Impuls so schnell, dass der Nulldurchgang des elektrischen Feldes zu einem Einbruch der Aufspaltung führt.

Im Rahmen der Untersuchungen zum dynamischen Stark-Effekt ergab sich für Germanium eine um einen Faktor 2 größere Blauverschiebung im Vergleich zu den Lite-

raturwerten für (GaIn)As. Dieser Unterschied konnte maßgeblich auf den Unterschied der  $T_2$ -Zeiten zurückgeführt werden. Außerdem wurde der Effekt erstmals in Abhängigkeit von der Verstimmung des treibenden elektrischen Feldes für einen Energiebereich von einigen 100 meV bestimmt. Dabei wurde eine lineare Abhängigkeit der Verschiebung der Resonanz von der Verstimmung festgestellt, was auf eine Dominanz der Pauliblockadeterme für diese Abhängigkeit schließen lässt. Bei quasi resonanter Anregung des direkten Bandüberganges wurde eine Überlagerung verschiedener Effekte beobachtet. Neben der normalen Blauverschiebung der Bandkante werden zu frühen Zeiten auch die Ausbildung eines Mollow-Triplets, eine Modulationen in den Kontinuumszuständen, sowie eine optischen Verstärkung ohne Ladungsträgerinversion beobachtet. Dabei zeigt sich die Mollow-Seitenbanden und die Modulation der Kontinuumszustände nur, wenn Anrege- und Abfrageimpuls kozyklisch zueinander polarisiert sind. Bei gegensätzlich zyklischer Polarisation wird Aufgrund der Auswahlregeln nur eine Verschiebung der Resonanz beobachtet. Für diesen Fall zeigt sich allerdings wie erwartet eine Spaltung der Lochresonanz in zwei Linien.

Im inkohärenten Zeitregime führt die Streuung der Elektronen in die L-Täler dazu, dass die direkten optischen Übergänge maßgeblich nur noch die Dynamik des Lochsystems widerspiegeln. Die Streuzeit der Elektronen wurde Temperaturabhängig gemessen und betrug bei Temperaturen unter 100 K 270 fs. Nach diesem Wert ist die thermische Energie des Kristallgitters groß genug um das TA-Phononen Band am L Punkt zu besetzen, was zu einer Abnahme der Streuzeit auf 192 fs bei 250 K führt. Durch diese schnelle Streuung der Elektronen ist es möglich vergleichsweise einfach die Spinpolarisation der Lochzustände zu bestimmen. Für eine spinpolarisierte Lochverteilung ergab sich bei einer Temperatur von 7 K eine Zerfallszeit von 2490 fs, welche sich bis 250 K auf 1094 fs reduzierte. Im Anschluss daran wurde die Abkühlung heißer Ladungsträgerverteilungen näher untersucht. Während die Elektronendynamik in den ersten einigen hundert fs das Verhalten der linearen Absorption dominiert, findet die Abkühlung der Ladungsträger auf Gittertemperatur auf einer Zeitskala von hunderten ps statt. Mithilfe theoretischer Rechnungen konnte gezeigt werden, dass die Lochverteilung selbst bei einer resonanten Anregung des direkten Bandüberganges eine Anfangstemperatur von über 1000 K annimmt. Die Energie die zum Aufheizen des Lochsystems notwendig ist, kann nur aus dem elektronischen System geliefert werden. Dieses bekommt durch die Streuung in die L-Täler bei 293 K eine Überschussenergie von 140 meV pro Ladungsträger. Da das Aufheizen der Lochverteilung in den Experimenten nicht beobachtet werden kann, muss es einen effizienten Streumechanismus geben, der die beiden Systeme aneinander koppelt. In dem

---

zeitlichen Verlauf der Ladungsträgertemperatur lässt sich ab 200 K eine deutliche verlangsamte Abkühlrate feststellen. Diese Temperatur markiert den Übergang von der durch optische Phononen dominierten Abkühlung hin zu einer Kühlung alleinig durch akkustische Phononen.

Zuletzt wurde die Verstärkungsdynamik in verspannten Germaniumschichten betrachtet. Es zeigte sich, dass die angeregten Löcher in Germanium durch freie Ladungsträgerabsorption effektiv zu einer Erhöhung der Absorption führen. Dieses zeigte sich deutlich an der transienten Absorption einer p-dotierten Probe. In einer n-dotierten Probe konnte eine optische Verstärkung nachgewiesen werden, mit einer Lebenszeit um eine ns. Daraufhin wurde aus dieser Probe eine Resonatorstruktur geätzt. Eine optische Anregung dieser Probe zeigte eine Photolumineszenz, die unter geeigneten Bedingungen eine Linie ausbildete. Diese Linie konnte einer verstärkten spontanen Emission zugeordnet werden. Ob sich die Probe im Lasingbetrieb befunden hat konnte jedoch nicht zweifelsfrei beantwortet werden.

Zusammenfassend kann man sagen, dass das Potential von Germanium für die Silizium Photonik noch immer nicht letztendlich beurteilt werden kann. Die Demonstration von optisch gepumpten Lasern auf diesem Material stimmt auf jeden Fall zuversichtlich, dass ein elektrisch betriebener Germaniumlaser in Greifweite ist. Sollte es gelingen einen solchen Laser zu realisieren ist der vielleicht entscheidende Schritt in Richtung der Verwirklichung integrierter opto-elektronischer Bauteile getan. Wie auch immer sich diese Frage entscheiden wird, die Verfügbarkeit von solchen hochqualitativen Germaniumproben eröffnet in jedem Fall die Tür zu einem tieferen Verständnis der Ladungsträgerdynamik.



## 6 Summary

In the past years Germanium has gained much attention due to its good optical properties. This lead to a constant improvement of the material quality archived with these material system. Today there are high quality bulk and quantum well samples available. Also the desired strain of these structures can be tailored.

Using one of these samples different optical phenomena were observed. The physical properties of Germanium lead to several unique behaviors of this material, compared to direct gap semiconductors. Despite the indirect band gap, Germanium has a local conduction band minimum at the  $\Gamma$  point, which is the reason for its often direct semiconductor like behavior.

The spectroscopic analysis of a (GaIn)As sample under the presence of strong THz pulses reveal an interexcitonic Autler-Townes effect. This is one of the first times this effect is has ever been observed. By applying a microscopic many body theory, the exact coherent dynamic is determined. This reveals that the typically used two level systems are not able to correctly describe the dynamics. The full microscopic calculations show that the excitation population is reaching far into the continuum states and is not confined to a limited number of states as implied by using a 2 level system. This result is also reproduced for Germanium samples, despite of the much shorter dephasing time in this material.

In this thesis also the dynamical Stark-effect is studied in a Germanium quantum well sample. For the first time this effect is measured as a function of the energetic detuning of the exciting light pulse in a range of several 100 meV. Using a driving electrical field, which is almost resonant to the lowest excitonic resonance, a combination of several different effects is observed. Beside an energetic blue shift of the resonances, as known from the dynamical Stark effect, also the formation of a Mollow-Triplet, a modulation signal in the continuum states and optical amplification without carrier inversion are observed.

In the incoherent time regime the optical properties of Germanium are mainly influenced by the electron scattering into the L-valleys and the cooling dynamic of the hole system. The electronic scattering time to the L-valleys is measured in dependence of the sample temperature. It varies from 270 fs at a temperature of 100 K to 192 fs at 250 K. This fast scattering of the electrons allows to easily determine the scattering rate between the different hole spin states. When creating a spin polarized hole population at a sample temperature of 7 K a spin scattering time of 2,5 ps is observed. At increasing sample temperature this decay time decreases to 1,1 ps at 250 K.

In the following time regime, the observed dynamic is attributed to the cooling of the hole system. The time scale of this process is in the order of several hundreds of ps. Using a theoretical model, it is shown that that even under resonant excitation of the quantum well samples, the initial temperature of the hole carrier distribution is over 1000 K. The energy necessary for this high temperature comes from an efficient coupling to the electronic system. The dynamic of the carrier temperature shows a reduction of the cooling rate around a temperature of 200 K. This observation shows the transition to a regime, in which the cooling is dominated by optical phonons to a cooling only by acoustical phonons.

In the end the optical gain dynamic in strained Germanium layers is discussed. A transient gain is observed in a n-doped Germanium sample, lasting for approximately 1 ns. By etching of a resonator structure on this sample, the formation of an emission line in the photoluminescence spectrum is observed. This line is created by stimulated spontaneous emission in the sample.

In conclusion, the potential of Germanium for the silicon photonics is yet unclear. The demonstration of optically pumped lasers based on this material gives hope for the construction of electrically pumped lasers. The realization of such a device could be the important step towards the realization of integrated opto-electronical circuits. However it turns out to be, the availability of high quality germanium nanostructures definitely opens a door to a deeper understanding of the excitation dynamics in this material.



## 7 Literatur

- [1] M. Araki, H. Koyama und N. Koshida. "Controlled electroluminescence spectra of porous silicon diodes with a vertical optical cavity". In: Applied physics letters 69 (1996), 2956 (siehe S. 1).
- [2] L Pavesi, L Dal Negro, C Mazzoleni, G Franzò und F Priolo. "Optical gain in silicon nanocrystals." In: Nature 408.6811 (Nov. 2000), 440–4. issn: 0028-0836. doi: 10.1038/35044012 (siehe S. 1, 93).
- [3] B Zheng u. a. "Room-temperature sharp line electroluminescence at 1.54 micrometres from an erbium-doped, silicon light-emitting diode". In: Applied Physics Letters 64.21 (1994) (siehe S. 1).
- [4] A. Kenyon, P. Trwoga, M. Federighi und C. Pitt. "Optical properties of PECVD erbium-doped silicon-rich silica: evidence for energy transfer between silicon microclusters and erbium ions". In: Journal of Physics: Condensed Matter 6 (1994), L319 (siehe S. 1).
- [5] R. Soref. "Silicon-based group IV heterostructures for optoelectronic applications". In: Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films 14.3 (1996), 913–918 (siehe S. 1).
- [6] D. Leong, M. Harry, K. Reeson und K. Homewood. "A silicon/iron-disilicide light-emitting diode operating at a wavelength of 1.5  $\mu\text{m}$ ". In: Nature 387.6634 (1997), 686–688 (siehe S. 1).
- [7] M. Groenert u. a. "Monolithic integration of room-temperature cw GaAs/AlGaAs lasers on Si substrates via relaxed graded GeSi buffer layers". In: Journal of applied physics 93 (2003), 362 (siehe S. 1).
- [8] Y.-H. Kuo u. a. "Strong quantum-confined Stark effect in germanium quantum-well structures on silicon." In: Nature 437.7063 (Okt. 2005), 1334–6. issn: 1476-4687. doi: 10.1038/nature04204 (siehe S. 2, 11, 93).

- [9] J. Liu, X. Sun, R. Camacho-Aguilera, L. C. Kimerling und J. Michel. "Ge-on-Si laser operating at room temperature". In: Optics Letters 35.5 (Feb. 2010), 679. issn: 0146-9592. doi: 10.1364/OL.35.000679 (siehe S. 2, 11, 97, 101).
- [10] M. El Kurdi, G. Fishman, S. Sauvage und P. Boucaud. "Band structure and optical gain of tensile-strained germanium based on a 30 band kp formalism". In: Journal of Applied Physics 107.1 (2010), 13710. issn: 00218979. doi: 10.1063/1.3279307 (siehe S. 2, 14, 15, 97).
- [11] M. Kira und S. Koch. "Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy". In: Progress in Quantum Electronics 30.5 (2006), 155–296. issn: 00796727. doi: 10.1016/j.pquantelec.2006.12.002 (siehe S. 3–5, 37).
- [12] A. D. Jameson u. a. "Transient optical response of quantum well excitons to intense narrowband terahertz pulses". en. In: Applied Physics Letters 95.20 (Nov. 2009), 201107. issn: 00036951. doi: 10.1063/1.3265735 (siehe S. 4, 38).
- [13] J. Danielson u. a. "Interaction of Strong Single-Cycle Terahertz Pulses with Semiconductor Quantum Wells". In: Physical Review Letters 99.23 (Dez. 2007), 1–4. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.99.237401 (siehe S. 4, 38, 40).
- [14] S. Leinß u. a. "Terahertz Coherent Control of Optically Dark Paraexcitons in Cu<sub>2</sub>O". In: Physical Review Letters 101.24 (Dez. 2008), 246401. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.101.246401 (siehe S. 4, 38).
- [15] J. Steiner. "Microscopic Theory of Linear and Nonlinear Terahertz Spectroscopy of Semiconductors". Diss. 2008 (siehe S. 4).
- [16] H. Haug und S. W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. 5th. World Scientific, Singapore, 2009. isbn: 978-9812838834 (siehe S. 6).
- [17] L. Schultheis, A. Honold, J. Kuhl, K. Köhler und C. Tu. "Optical dephasing of homogeneously broadened two-dimensional exciton transitions in GaAs quantum wells". In: Physical Review B 34.12 (Dez. 1986), 9027–9030. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.34.9027 (siehe S. 7).
- [18] C. Lange u. a. "Comparison of ultrafast carrier thermalization in Ga<sub>x</sub>In<sub>1-x</sub>As and Ge quantum wells". In: Physical Review B 81.4 (Jan. 2010), 45320. issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.81.045320 (siehe S. 8).

- 
- [19] P. Y. Yu und M Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer, Berlin, 2001 (siehe S. 9).
- [20] Y. Rong u. a. "Quantum-Confined Stark Effect in Ge/SiGe Quantum Wells on Si". In: *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 16.1 (2010), 85–92. issn: 1077-260X. doi: 10.1109/JSTQE.2009.2031502 (siehe S. 11, 48, 93).
- [21] J. Liu, X. Sun, L. C. Kimerling und J. Michel. "Direct-gap optical gain of Ge on Si at room temperature". In: *Optics Letters* 34.11 (Mai 2009), 1738. issn: 0146-9592. doi: 10.1364/OL.34.001738 (siehe S. 11, 101).
- [22] Landolt-Börnstein. *Landolt-Börnstein: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology - New Series*. Hrsg. von O Madelung. Bd. III/17a. Springer Verlag, 1982 (siehe S. 11, 87).
- [23] Y. Ishikawa u. a. "Strain-induced enhancement of near-infrared absorption in Ge epitaxial layers grown on Si substrate". In: *Journal of Applied Physics* 98.1 (2005), 013501. issn: 00218979. doi: 10.1063/1.1943507 (siehe S. 13, 14, 31).
- [24] D CHRASTINA u. a. "Thin relaxed SiGe virtual substrates grown by low-energy plasma-enhanced chemical vapor deposition". In: *Journal of Crystal Growth* 281.2-4 (Aug. 2005), 281–289. issn: 00220248. doi: 10.1016/j.jcrysgro.2005.04.040 (siehe S. 16, 31).
- [25] S Tsujino, H Sigg, G Mussler, D Chrastina und H. von Känel. "Photocurrent and transmission spectroscopy of direct-gap interband transitions in Ge/SiGe quantum wells". In: *Applied Physics Letters* 89.26 (2006), 262119. issn: 00036951. doi: 10.1063/1.2425032 (siehe S. 17).
- [26] Träger, Hrsg. *Springer Handbook of Lasers and Optics*. Springer, 2007 (siehe S. 21).
- [27] M. Shur. "Terahertz technology: devices and applications". In: *Solid-State Circuits Conference, 2005. ESSCIRC 2005. Proceedings of the 31st European. IEEE. 2005*, 13–21 (siehe S. 24).
- [28] Q Wu und X.-C. Zhang. "Free-space electro-optic sampling of terahertz beams". In: *Applied Physics Letters* 67.24 (1995), 3523. issn: 00036951. doi: 10.1063/1.114909 (siehe S. 26).

- [29] P. Jepsen u. a. "Detection of THz pulses by phase retardation in lithium tantalate". In: Physical Review E 53.4 (Apr. 1996), R3052–R3054. issn: 1063-651X. doi: 10.1103/PhysRevE.53.R3052 (siehe S. 26).
- [30] C Lange u. a. "The variable stripe-length method revisited: Improved analysis". In: Applied Physics Letters 91.19 (2007), 191107. issn: 00036951. doi: 10.1063/1.2802049 (siehe S. 27).
- [31] B. W. Hakki. "cw degradation at 300°K of GaAs double-heterostructure junction lasers. II. Electronic gain". In: Journal of Applied Physics 44.9 (1973), 4113. issn: 00218979. doi: 10.1063/1.1662905 (siehe S. 27).
- [32] M Bonfanti u. a. "Optical transitions in Ge/SiGe multiple quantum wells with Ge-rich barriers". In: Physical Review B 78.4 (Juli 2008), 41407. issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.78.041407 (siehe S. 29, 30, 93).
- [33] M Virgilio und G Grosso. "{Type-I} alignment and direct fundamental gap in {SiGe} based heterostructures". In: Journal of Physics: Condensed Matter 18 (2006), 1021–1031 (siehe S. 29).
- [34] D. Chrastina u. a. *Proceedings of the IEEE Fifth International Conference on Group IV Photonics*. 2008 (siehe S. 30).
- [35] L. J. Van Der Pauw. "A method of measuring specific resistivity and Hall effect of discs of arbitrary shape". In: Philips Research Reports 13.1 (1958), 1–9 (siehe S. 31).
- [36] L. J. V. D. PAUW. "A method of measuring the resistivity and Hall coefficient on lamellae of arbitrary shape". In: Philips Technical Review 20.8 (1958), 220–224 (siehe S. 31).
- [37] N. S. Köster u. a. "Giant dynamical Stark shift in germanium quantum wells". In: Applied Physics Letters May (2011), 2–4. doi: 10.1063/1.3580630 (siehe S. 35, 45).
- [38] I. Rabi. "Space Quantization in a Gyating Magnetic Field". In: Physical Review 51.8 (Apr. 1937), 652–654. issn: 0031-899X. doi: 10.1103/PhysRev.51.652 (siehe S. 35).
- [39] B. Mollow. "Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems". In: Physical Review 188.5 (Dez. 1969), 1969–1975. issn: 0031-899X. doi: 10.1103/PhysRev.188.1969 (siehe S. 36).

- 
- [40] S. Autler und C. Townes. "Stark Effect in Rapidly Varying Fields". In: *Physical Review* 100.2 (Okt. 1955), 703–722. issn: 0031-899X. doi: 10.1103/PhysRev.100.703 (siehe S. 36).
- [41] A Mysyrowicz u. a. "'Dressed excitons in a multiple-quantum-well structure: Evidence for an optical Stark effect with femtosecond response time.'" In: *Physical review letters* 56.25 (Juni 1986), 2748–2751. issn: 1079-7114. doi: 10.1103/PhysRevLett.56.2748 (siehe S. 36, 49, 56, 60).
- [42] M. D. Frogley, J. F. Dynes, M. Beck, J. Faist und C. C. Phillips. "Gain without inversion in semiconductor nanostructures". In: *Nature Materials* 5.3 (Feb. 2006), 175–178. issn: 1476-1122. doi: 10.1038/nmat1586 (siehe S. 37, 58, 61, 63).
- [43] A Zrenner u. a. "Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode." In: *Nature* 418.6898 (Aug. 2002), 612–4. issn: 0028-0836. doi: 10.1038/nature00912 (siehe S. 37).
- [44] O. Mücke, T Tritzschler, M Wegener, U Morgner und F. Kärtner. "Signatures of Carrier-Wave Rabi Flopping in GaAs". In: *Physical Review Letters* 87.5 (Juli 2001), 57401. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.87.057401 (siehe S. 37).
- [45] A Schülzgen u. a. "Direct Observation of Excitonic Rabi Oscillations in Semiconductors". In: *Physical Review Letters* 82.11 (März 1999), 2346–2349. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.82.2346 (siehe S. 37).
- [46] M. Wegener, D. Chemla, S. Schmitt-Rink und W. Schäfer. "Line shape of time-resolved four-wave mixing". In: *Physical Review A* 42.9 (Nov. 1990), 5675–5683. issn: 1050-2947. doi: 10.1103/PhysRevA.42.5675 (siehe S. 37).
- [47] K. Leo u. a. "Effects of coherent polarization interactions on time-resolved degenerate four-wave mixing". In: *Physical Review Letters* 65.11 (Sep. 1990), 1340–1343. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.65.1340 (siehe S. 37).
- [48] B. E. Cole, J. B. Williams, B. T. King, M. S. Sherwin und C. R. Stanley. "Coherent manipulation of semiconductor quantum bits with terahertz radiation". In: *Nature* 410.6824 (2001), 60–63. issn: 0028-0836 (siehe S. 38).
- [49] C. Luo u. a. "Phase-Resolved Nonlinear Response of a Two-Dimensional Electron Gas under Femtosecond Intersubband Excitation". In: *Physical Review*

- Letters 92.4 (Jan. 2004), 47402. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.92.047402 (siehe S. 38).
- [50] H. Hirori, M. Nagai und K. Tanaka. "Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/ZnMgSSe multiple quantum wells". In: Physical Review B 81.8 (Feb. 2010), 081305+. issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.81.081305 (siehe S. 38, 45, 47).
- [51] M. Wagner u. a. "Observation of the Intraexciton Autler-Townes Effect in GaAs/AlGaAs Semiconductor Quantum Wells". In: Physical Review Letters 105.16 (Okt. 2010). issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.105.167401 (siehe S. 38, 43).
- [52] J. Steiner, M. Kira und S. Koch. "Optical nonlinearities and Rabi flopping of an exciton population in a semiconductor interacting with strong terahertz fields". In: Physical Review B 77.16 (Apr. 2008). issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.77.165308 (siehe S. 40).
- [53] J. Dynes, M. Frogley, M. Beck, J. Faist und C. Phillips. "ac Stark Splitting and Quantum Interference with Intersubband Transitions in Quantum Wells". In: Physical Review Letters 94.15 (Apr. 2005), 3–6. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.94.157403 (siehe S. 49).
- [54] S. Schmitt-Rink und D. Chemla. "Collective Excitations and the Dynamical Stark Effect in a Coherently Driven Exciton System". In: Physical Review Letters 57.21 (Nov. 1986), 2752–2755. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.57.2752 (siehe S. 49).
- [55] M. Lindberg und S. Koch. "Effective Bloch equations for semiconductors". In: Physical Review B 38.5 (Aug. 1988), 3342–3350. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.38.3342 (siehe S. 49, 58).
- [56] I. Balslev, R. Zimmermann und A. Stahl. "Two-band density-matrix approach to nonlinear optics of excitons". In: Phys. Rev. B 40.6 (Aug. 1989), 4095–4104. doi: 10.1103/PhysRevB.40.4095 (siehe S. 49).
- [57] P. Brick u. a. "Influence of light holes on the heavy-hole excitonic optical Stark effect". In: Physical Review B 64.7 (Juli 2001), 75323. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.64.075323 (siehe S. 50).
- [58] M. Joffre, D. Hulin, A. Migus und M. Combescot. "Laser-Induced Exciton Splitting". In: Physical Review Letters 62.1 (Jan. 1989), 74–77. issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.62.74 (siehe S. 52, 53).

- 
- [59] I. Rumyantsev, N. Kwong, R. Takayama und R. Binder. "Effects of intervalence band coherences on the coherently coupled heavy-hole–light-hole Stark shift in semiconductor quantum wells". In: *Physical Review B* 65.24 (Juni 2002), 1–10. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.65.245325 (siehe S. 53).
- [60] C. Ell, J. F. Müller, K. E. Sayed, L. Banyai und H. Haug. "Evaluation of the Hartree-Fock Theory of the Excitonic Optical Stark Effect". en. In: *physica status solidi (b)* 150.2 (Dez. 1988), 393–399. issn: 1521-3951. doi: 10.1002/pssb.2221500207 (siehe S. 56).
- [61] R. Binder, S. W. Koch, M. Lindberg, W. Schäfer und F. Jahnke. "Transient many-body effects in the semiconductor optical Stark effect: A numerical study". In: *Physical Review B* 43.8 (März 1991), 6520–6529. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.43.6520 (siehe S. 56, 58, 59).
- [62] C. Lange u. a. "Ultrafast nonlinear optical response of photoexcited Ge/SiGe quantum wells: Evidence for a femtosecond transient population inversion". In: *Physical Review B* 79.20 (Mai 2009), 201306. issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.79.201306 (siehe S. 56, 93–95).
- [63] C. Sieh u. a. "Influence of carrier correlations on the excitonic optical response including disorder and microcavity effects". In: *The European Physical Journal B* 11.3 (1999), 407. issn: 14346028. doi: 10.1007/s100510050951 (siehe S. 57).
- [64] P. Brick. "Coherent optical nonlinearities in semiconductor microstructures". Diss. 2001 (siehe S. 57, 59, 63).
- [65] R. Binder, S. W. Koch, M. Lindberg, N. Peyghambarian und W. Schäfer. "Ultrafast adiabatic following in semiconductors". In: *Physical Review Letters* 65.7 (Aug. 1990), 899. doi: 10.1103/PhysRevLett.65.899 (siehe S. 57, 58, 63).
- [66] G. Khitrova und H. M. Gibbs. "Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities". In: *Reviews of Modern Physics* 71.5 (Okt. 1999), 1591–1639. issn: 0034-6861. doi: 10.1103/RevModPhys.71.1591 (siehe S. 58).
- [67] R. De Sousa und S. D. Sarma. "Electron spin coherence in semiconductors: Considerations for a spin-based solid state quantum computer architecture". In: *Physical Review B* 67.3 (2002), 1–4 (siehe S. 69).

- [68] R. A. Zak, B. Röthlisberger, S. Chesi und D. Loss. “Quantum Computing with Electron Spins in Quantum Dots”. In: Measurement (2009), 61 (siehe S. 69).
- [69] T. Ostatnický u. a. “Electron- and hole-spin relaxation within excitons in GaAs quantum wells by non-degenerate pump-and-probe measurements”. In: Physical Review B 75.16 (Apr. 2007). issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.75.165311 (siehe S. 70, 76).
- [70] D. Hilton und C. Tang. “Optical Orientation and Femtosecond Relaxation of Spin-Polarized Holes in GaAs”. In: Physical Review Letters 89.14 (Sep. 2002). issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.89.146601 (siehe S. 70).
- [71] M. Krauß, M. Aeschlimann und H. Schneider. “Ultrafast Spin Dynamics Including Spin-Orbit Interaction in Semiconductors”. In: Physical Review Letters 100.25 (Juni 2008). issn: 0031-9007. doi: 10.1103/PhysRevLett.100.256601 (siehe S. 70).
- [72] L. J. Sham. “Spin relaxation in semiconductor quantum wells”. In: Journal of Physics: Condensed Matter 5.33A (Aug. 1993), A51–A60. issn: 0953-8984. doi: 10.1088/0953-8984/5/33A/005 (siehe S. 70).
- [73] N S Averkiev et al. *Spin relaxation anisotropy in two-dimensional semiconductor systems*. 2002. doi: <http://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/14/12/202> (siehe S. 70).
- [74] Y. Zhou u. a. “Electrical spin injection and transport in Germanium”. In: Physics (2011), 1–17 (siehe S. 70).
- [75] S. A. Claussen, E. Tasyurek, J. E. Roth und D. A. B. Miller. “Measurement and modeling of ultrafast carrier dynamics and transport in germanium/silicon-germanium quantum wells.” In: Optics Express 18.25 (2010), 25596–25607. doi: 10.1364/OE.18.025596 (siehe S. 71).
- [76] E. J. Loren u. a. “Hole spin relaxation and intervalley electron scattering in germanium”. In: Phys. Rev. B 84 (21 2011), 214307. doi: 10.1103/PhysRevB.84.214307 (siehe S. 71).
- [77] A. L. Smirl, E. J. Loren, J. Rioux, J. E. Sipe und H. M. V. Driel. “Ultrafast Optical Measurement of Hole and Electron Spin Dynamics in Germanium”. In: America (2010), 3–4 (siehe S. 71, 75, 76).
- [78] W. Weber. “Adiabatic bond charge model for the phonons in diamond, Si, Ge, and  $\alpha$ -Sn”. In: Physical Review B 15.10 (Mai 1977), 4789–4803. issn: 0556-2805. doi: 10.1103/PhysRevB.15.4789 (siehe S. 75).



- 
- [79] A. Giorgioni u. a. "Photoluminescence decay of direct and indirect transitions in Ge/SiGe multiple quantum wells". In: Journal of Applied Physics 111.1, 013501 (2012), 013501. doi: 10.1063/1.3673271 (siehe S. 77, 85).
- [80] H. van Driel. "Influence of hot phonons on energy relaxation of high-density carriers in germanium". In: Physical Review B 19.11 (Juni 1979), 5928–5932. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.19.5928 (siehe S. 78, 79).
- [81] A. Othonos, H. van Driel, J. Young und P. Kelly. "Correlation of hot-phonon and hot-carrier kinetics in Ge on a picosecond time scale". In: Physical Review B 43.8 (März 1991), 6682–6690. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.43.6682 (siehe S. 78, 87).
- [82] M. Woerner, T. Elsaesser und W. Kaiser. "Relaxation processes of hot holes in p-type germanium studied by picosecond infrared spectroscopy". In: Physical Review B 45.15 (Apr. 1992), 8378–8387. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.45.8378 (siehe S. 78, 80, 87).
- [83] J Shah und R. F. Leheny. "Semiconductors probed by ultrafast laser spectroscopy". In: Orlando, FL, Academic Press (1984), 45–75 (siehe S. 78).
- [84] J YOUNG, K WAN und H VANDRIEL. "Picosecond Raman scattering from non-equilibrium LO and TO phonons in germanium". In: Solid-State Electronics 31.3-4 (März 1988), 455–458. issn: 00381101. doi: 10.1016/0038-1101(88)90317-6 (siehe S. 78, 80).
- [85] S. Wei und M. Chou. "Phonon dispersions of silicon and germanium from first-principles calculations". In: Physical Review B 50.4 (Juli 1994), 2221–2226. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.50.2221 (siehe S. 79).
- [86] J Shah. "Photoexcited hot LO phonons in GaAs". In: Solid State Communications 8.14 (Juli 1970), 1089–1093. issn: 00381098. doi: 10.1016/0038-1098(70)90002-5 (siehe S. 79).
- [87] C. Collins und P. Yu. "Generation of nonequilibrium optical phonons in GaAs and their application in studying intervalley electron-phonon scattering". In: Physical Review B 30.8 (Okt. 1984), 4501–4515. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.30.4501 (siehe S. 79).
- [88] J Collet, A Cornet, M Pugnet und T Amand. "Cooling of high density electron-hole plasma". In: Solid State Communications 42.12 (Juni 1982), 883–887. issn: 00381098. doi: 10.1016/0038-1098(82)90232-0 (siehe S. 79).

- [89] W. Pötz und P. Kocevar. "Electronic power transfer in pulsed laser excitation of polar semiconductors". In: *Physical Review B* 28.12 (Dez. 1983), 7040–7047. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.28.7040 (siehe S. 79).
- [90] D. Paul. "8-band k.p modeling of the quantum confined Stark effect in Ge quantum wells on Si substrates". In: *Physical Review B* 77.15 (Apr. 2008), 1–7. issn: 1098-0121. doi: 10.1103/PhysRevB.77.155323 (siehe S. 83).
- [91] Y. Rosenwaks u. a. "Hot-carrier cooling in GaAs: Quantum wells versus bulk." In: *Physical review. B, Condensed matter* 48.19 (Nov. 1993), 14675–14678. issn: 0163-1829. doi: 10.1103/PhysRevB.48.14675 (siehe S. 87).
- [92] D. W. Bailey und C. J. Stanton. "Calculations of femtosecond differential optical transmission in germanium". In: *Journal of Applied Physics* 77.5 (1995), 2107. issn: 00218979. doi: 10.1063/1.358786 (siehe S. 87).
- [93] A. Othonos. "Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors". en. In: *Journal of Applied Physics* 83.4 (1998), 1789. issn: 00218979. doi: 10.1063/1.367411 (siehe S. 88).
- [94] F. H. Su u. a. "Terahertz pulse induced intervalley scattering in photoexcited GaAs". In: *Opt. Express* 17.12 (2009), 9620–9629. doi: 10.1364/OE.17.009620 (siehe S. 90).
- [95] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh und K. A. Nelson. "THz-pump/THz-probe spectroscopy of semiconductors at high field strengths". In: *J. Opt. Soc. Am. B* 26.9 (2009), A29–A34. doi: 10.1364/JOSAB.26.000A29 (siehe S. 90).
- [96] S. Hughes und D. S. Citrin. "Ultrafast heating and switching of a semiconductor optical amplifier using half-cycle terahertz pulses". In: *Phys. Rev. B* 58 (24 1998), R15969–R15972. doi: 10.1103/PhysRevB.58.R15969 (siehe S. 90).
- [97] H. Wada und T. Kamijoh. "Room-temperature CW operation of InGaAsP lasers on Si fabricated by wafer bonding". In: *IEEE Photonics Technology Letters* 8.2 (1996), 173–175. issn: 10411135. doi: 10.1109/68.484231 (siehe S. 93).
- [98] S. Borck. "Transiente Ladungsträgerdynamik und optische Verstärkung in III-V-Halbleitern". Diss. 2006 (siehe S. 93, 100).
- [99] H Rong u. a. "An all-silicon Raman laser". In: *Nature* 433.7023 (2005) (siehe S. 93).
- [100] P. Chaisakul u. a. "Quantum-confined Stark effect measurements in Ge/SiGe quantum-well structures". In: *Opt. Lett.* 35.17 (2010), 2913–2915 (siehe S. 93).

- 
- [101] X. Sun, J. Liu, L. C. Kimerling und J. Michel. "Direct gap photoluminescence of n-type tensile-strained Ge-on-Si". In: Applied Physics Letters 95.1 (2009), 011911. issn: 00036951. doi: 10.1063/1.3170870 (siehe S. 93).
- [102] N. S. Köster u. a. *Transient optical gain and carrier dynamics in Ge/SiGe quantum wells*. Hrsg. von J.-J. Song, K.-T. Tsen, M. Betz und A. Y. Elezzabi. Bd. 7600. 1. SPIE, 2010, 76000B–76000B–9. doi: 10.1117/12.840598 (siehe S. 93).
- [103] N. Köster. "Transiente Ladungsträgerdynamik und optische Verstärkung in Ge/SiGe-Quantenfilmen". Diplomarbeit. Philipps-Universität Marburg, 2008 (siehe S. 95).
- [104] R Newman und W. W. Tyler. "Effect of Impurities on Free-Hole Infrared Absorption in p-Type Germanium". In: Physical Review 105.3 (1957) (siehe S. 95, 96).
- [105] J. Liu u. a. "Tensile-strained, n-type Ge as a gain medium for monolithic laser integration on Si". In: Optics Express 15.18 (2007), 11272. issn: 1094-4087. doi: 10.1364/OE.15.011272 (siehe S. 97).



## 8 Veröffentlichungen

- N. S. Köster, K. Kolata, R. Woscholski, C. Lange, G. Isella, D. Chrastina, H. von Känel, S. Chatterjee, *Giant dynamical Stark shift in germanium quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **98**, 161103 (2011).
- K. Kolata, S. Imhof, N. S. Köster, S. Cecchi, D. Chrastina, G. Isella, J. E. Sipe, A. Thränhardt, and S. Chatterjee, *Hole system heating by ultrafast interband energy transfer in optically excited Ge/SiGe quantum wells*, Phys. Rev. B **85**, 165312 (2012).
- B. Ewers, N.S. Köster, R. Woscholski, M. Koch, S. Chatterjee, G. Khitrova, H.M. Gibbs, A.C. Klettke, M. Kira and S.W. Koch, *Ionization of coherent excitons by strong terahertz fields*, Phys. Rev. B **85**, 075307 (2012)
- N. S. Köster, C. Lange, K. Kolata, S. Chatterjee, D. Chrastina, G. Isella, H. von Känel, H. Sigg, M. Schäfer, M. Kira and S.W. Koch, *Ultrafast transient gain in Ge/SiGe quantum wells*, Phys. Stat. Sol. (c) **8**, 1109–1112 (2011).
- C. Lange, G. Isella, D. Chrastina, F. Pezzoli, N. S. Köster, R. Woscholski, and S. Chatterjee, *Spin band-gap renormalization and hole spin dynamics in Ge/SiGe quantum wells*, für die Veröffentlichung von Phys. Rev. B akzeptiert.
- E. Gatti, E. Grilli, M. Guzzi, D. Chrastina, G. Isella, A. Chernikov, V. Bornwasser, N. Köster, R. Woscholski, S. Chatterjee, *Photoluminescence and ultrafast intersubband relaxation in Ge/SiGe multiple quantum wells*, Physical Review B **84**, 245319 (2011).

- S. Imhof, C. Wagner, A. Thränhardt, A. Chernikov, M. Koch, N. S. Köster, S. Chatterjee, S. W. Koch, O. Rubel, X. Lu, S. R. Johnson, D. A. Beaton, T. Tiedje, *Luminescence dynamics in Ga(AsBi)*, Appl. Phys. Lett. **98**, 161104 (2011).
- S. Imhof, C. Wagner, A. Chernikov, M. Koch, K. Kolata, N. S. Köster, S. Chatterjee, S. W. Koch, X. Lu, S. R. Johnson, D. A. Beaton, T. Tiedje, O. Rubel and A. Thränhardt, *Evidence of two disorder scales in Ga(AsBi)*, Phys. Stat. Sol. (b) **248**; 851–854 (2011).
- S. Imhof, A. Thränhardt, A. Chernikov, M. Koch, N. S. Köster, S. Chatterjee, S. W. Koch, X. Lu, S. R. Johnson, D. A. Beaton, T. Tiedje, O. Rubel, *Clustering Effects in Ga(AsBi)*, Appl. Phys. Lett. **96**, 131115 (2010) .
- C. Lange, N. S. Köster, S. Chatterjee, H. Sigg, D. Chrastina, G. Isella, H. von Känel, B. Kunert, W. Stolz, *A comparison of ultrafast carrier thermalization in Ge and (GaIn)As quantum wells*, Phys. Rev. B **81**, 045320 (2010) .
- N. S. Köster, S. Chatterjee, C. Lange, H. Sigg, G. Isella, D. Chrastina, H. von Känel, M. Schäfer, M. Kira, S. W. Koch, *Transient optical gain and carrier dynamics in Ge/SiGe quantum wells*, Proc SPIE 7600 (2010).
- C. Lange, N. S. Köster, S. Chatterjee, H. Sigg, D. Chrastina, G. Isella, H. von Känel, M. Schäfer, M. Kira, S. W. Koch, *Ultrafast nonlinear optical response of photoexcited Ge/SiGe quantum wells: Evidence for a femtosecond transient population inversion*, Phys. Rev. B **79**, 201306 (2009).
- B. Kunert, I. Németh, S. Zinnkann, G. Lukin, R. Fritz, K. Volz, W. Stolz, C. Lange, N.S. Köster, D.J. Franzbach, S. Chatterjee, W. Rühle, N.C. Gerhardt, N.Koukourakis, M. Hofmann, *Lasing of lattice-matched Ga(NAsP) quantum well heterostructures monolithically integrated on (001) Si substrate*, SPIE OPTO Photonics West 1/2009.

- 
- C. Lange, N. S. Köster, D. J. Franzbach, S. Chatterjee, W. W. Rühle, S. Zinnkann, S. Liebich, I. Németh, R. Fritz, K. Volz, W. Stolz, B. Kunert, N. C. Gerhardt, N. Koukourakis, and M. Hofmann, *Lasing in Optically Pumped Ga(NAsP)/(BGa)(AsP) Heterostructures on Silicon*, in Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2009).
  - S. Chatterjee, C. Lange, N. S. Köster, H. Sigg, G. Isella, D. Chrastina, H. von Känel, M. Schäfer, M. Kira, S. W. Koch, *Transient optical gain and carrier dynamics in Ge/SiGe quantum wells*, SPIE OPTO Photonics West 1/2010.
  - C. Lange, N. S. Köster, H. Sigg, G. Isella, D. Chrastina, H. von Känel, M. Schäfer, M. Kira, S. W. Koch, and S. Chatterjee, *Transient optical gain in strained germanium quantum wells*, DPG Focussed Session on Si Photonics 3/2010.
  - S. Chatterjee, C. Lange, N. S. Köster, H. Sigg, G. Isella, D. Chrastina, H. von Känel, M. Schäfer, M. Kira, S. W. Koch, *Transient optical gain in strained germanium quantum wells*, SPIE Photonics Europe 4/2010.

Weitere Veröffentlichungen zur Kohärenzzeit der kohärenten Polarisation in Germanium und zum dynamischen Stark Effekt sind in Vorbereitung.





## 9 Danksagung

Zum Schluss noch ein Dank an alle, die wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit in den letzten Jahren beigetragen haben.

An erster Stelle möchte ich Sangam Chatterjee und Prof. Wolfgang Rühle für die Möglichkeit danken, an diesem Projekt arbeiten zu können. Ich habe die Arbeit im Labor stets genossen, auch wenn es Zeiten gab, in denen scheinbar nichts funktionieren wollte. Auch danke ich Sangam für das unermüdliches Engagement, mit dem er sich für das Gelingen der Projekte eingesetzt hat.

Ein ganz besonderer Dank gilt Benjamin Ewers, Kolja Kolata, Ronja Woscholski und Michael Drexler, mit denen ich zusammen an den verschiedenen Experimenten gearbeitet habe. Ohne Euch wäre vieles nicht möglich gewesen.

Großer Dank geht an Alexej Chernikov und Kapil Kohli. Sie fanden stets die Zeit unsere alltäglichen Probleme zu diskutieren um gemeinsam Lösungswege zu finden.

Andrea Klettke aus der Arbeitsgruppe von Prof. M. Kira und Prof. S.W. Koch, sowie Sebastian Imhof aus der Arbeitsgruppe von Prof. A. Thränhardt danke ich für die gute Zusammenarbeit an unseren Projekten.

Danke auch an die restliche Arbeitsgruppe für die schöne Zeit, die wir zusammen hatten. Die großartige Stimmung hat viel zu meiner Freude an der Arbeit beigetragen.

Jedes Experiment steht und fällt mit den Teilen aus denen es besteht. Das bei uns immer alles fest gestanden hat, ist der Verdienst von Rüdiger Rink, Hermann Günther, sowie dem restliche Team der Werkstatt. Auch in den verzwicktesten Situationen fanden sie stets eine technische Lösung.

Für elektrische Dilemmas aller Art standen mir Matthias Born, Carsten Schindler und die Elektronikwerkstatt stets mit schnellen Hilfestellungen zur Seite.

Für seine Unterstützung in meinem Kampf gegen die deutsche Grammatik und Rechtschreibung danke ich Walter Popellak.

## *9 Danksagung*

---

Vielen Dank an meine Eltern, für Ihre ständige Unterstützung, welche diesen Weg für mich überhaupt erst möglich gemacht hat.

Und natürlich danke ich Helene, die mich in der ganzen Zeit unterstützt hat und immer an meiner Seite stand.

---



# Erklärung

Ich versichere, dass ich meine Dissertation mit dem Thema:

## **Kohärente optische Prozesse und inkohärente Ladungsträgerdynamik in Germanium**

selbständig ohne unerlaubte Hilfe angefertigt und mich dabei keiner anderen als der von mir ausdrücklich bezeichneten Quellen bedient habe.

Die Dissertation wurde in der jetzigen oder einer ähnlichen Form noch bei keiner anderen Hochschule eingereicht und hat noch keinen sonstigen Prüfungszwecken gedient.

Name, Vorname: Köster, Niko

Marburg, den

---

Ort, Datum

---

Unterschrift